
Beitrag zur NO_x Emissionsminderung für Niedrig-Emissions-Fahrzeuganwendungen mittels Selektiver-Katalytischer-Reduktion

Vom Fachbereich Maschinenbau der Technischen Universität Darmstadt
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)
genehmigte

DISSERTATION

vorgelegt von
Dipl.-Ing. Andreas Schmitt
aus Rüsselsheim

Berichterstatter:	Prof. Dr. techn. C. Beidl
Mitberichterstatter:	Prof. Dr. sc. techn. T. Koch
Tag der Einreichung:	30.04.2013
Tag der mündlichen Prüfung:	20.06.2013

Darmstadt 2013

D17



I. Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe (VKM) der Technischen Universität Darmstadt unter der Leitung von Prof. Dr. techn. C. Beidl. Die Inhalte der Dissertation wurden im Rahmen von mehreren Industrieprojekten in Kooperation mit demselben Industrieunternehmen erarbeitet. Hierfür gilt mein besonderer Dank meinem Projektpartner für die sehr angenehme und hervorragende Zusammenarbeit über mehrere Jahre hinweg.

Herrn Prof. Dr. techn. C. Beidl danke ich herzlich für das mir stets entgegengebrachte Vertrauen und das bei der Erstellung und Organisation dieser Arbeit gewährte, hohe Maß an Selbstständigkeit. Ebenso wertvoll für das Gelingen war seine fachliche und persönliche Unterstützung, wann immer sie erforderlich war.

Herrn Prof. Dr. sc. techn. T. Koch danke ich für das dieser Arbeit entgegengebrachte Interesse und die Übernahme der Mitberichterstattung.

Mein Dank gilt ebenso meinen Kollegen, für den regen und wertvollen Gedankenaustausch, sowie die hervorragende Zusammenarbeit im Institutsalltag. Gleichfalls danke ich Fr. Schreiber, die stets ein offenes Ohr für mich hatte und mir in administrativen Angelegenheiten, wann immer erforderlich, helfend zur Seite stand.

Des Weiteren möchte ich mich bei allen Studenten bedanken, die mich als Thesis- oder Diplomarbeiter auf meinem Weg begleitet haben. Nicht zuletzt gilt mein Dank all den Studenten, die mich als wissenschaftliche Hilfskräfte in den vergangenen fünf Jahren meiner Tätigkeit am Institut VKM stets mit einer helfenden Hand tatkräftig am Motorprüfstand unterstützt haben. Ohne sie wäre die sehr intensive Arbeit am Motorprüfstand nicht zu bewältigen gewesen.

Darmstadt im Frühjahr 2013



II. Kurzfassung

Die Technologie der Emissionsminderung von Stickoxiden (NO_x) am Dieselmotor mittels selektiver katalytischer Reduktion (SCR) wurde im Jahre 2004 erstmals im Nutzfahrzeugsegment und 2007 im PKW-Segment für die Serie eingeführt. Die damaligen, wie auch die heutigen SCR Systeme basieren größtenteils auf der Dosierung des flüssigen Reagenzmittels AdBlue® in Verbindung mit einem im Unterbodenbereich positionierten SCR Katalysator. Die Effizienz der NO_x Emissionsminderung, die in der Regel mit solchen Systemen erzielt wird, genügt zur Erfüllung der heute geltenden Abgasnormen. Mit Inkrafttreten einer jeden neuen Abgasnorm ist jedoch von einer weiteren Verschärfung des Grenzwertes für die NO_x Emissionen auszugehen. So wird beispielsweise mit dem Wechsel von Euro 5 auf Euro 6 im Jahre 2014 der Grenzwert für den PKW-Dieselmotor von 180 mg/km auf 80 mg/km herabgesetzt. Dies erfordert für zukünftige Niedrig-Emissions-Fahrzeuge einerseits die Weiterentwicklung von innermotorischen Maßnahmen zur Senkung der NO_x Rohemissionen und andererseits die Weiterentwicklung von Abgasnachbehandlungssystemen, wie dem SCR System. Generell bieten aktuelle SCR Systeme noch großes Potential zu einer Effizienzsteigerung. Ein Aspekt hierbei, ist der Wechsel des Reagenzmediums von flüssigem AdBlue® hin zu gasförmigem Ammoniak. Dies hätte unter anderem folgende Vorteile: die Möglichkeit zur Dosierung des Reagenzmittels bei geringeren Abgastemperaturen durch Entfall der notwendigen Verdampfung und der anschließenden Hydro- und Thermolysereaktionen und damit die Möglichkeit zur Nutzung der Niedertemperaturaktivität und der erhöhten NH_3 Speicherfähigkeit des SCR Katalysators. Zusätzlich kann die Bildung von Ablagerungen vermieden werden. Ein weiterer Aspekt ist die Funktionsintegration von SCR Beschichtungen auf Dieselpartikelfiltern (DPF). Diese sogenannten SCRf Katalysatoren haben den Vorteil, dass sie anstelle des Dieselpartikelfilters in motornaher Position verbaut werden können. Der Katalysator würde nach einem Motor-kaltstart wesentlich schneller seine Light-Off Temperatur erreichen und könnte früher NO_x konvertieren. Ein sekundärer Effekt wäre, dass die Heat-Up Phase zum Aufheizen des Katalysators verkürzt werden könnte und sich somit zusätzliche Kraftstoffeinsparungen und die Reduzierung von CO_2 Emissionen erzielen lassen.

Die Motivation für diese Dissertation leitet sich aus den beschriebenen Nachteilen der aktuell im Feld befindlichen SCR Systemen und der Notwendigkeit mögliche Potentiale mit neuen Methoden nutzbar zu machen ab. Den Themenkomplex dieser Arbeit bilden daher die Entwicklungsmethodik und die detaillierte Systembetrachtung von innovativen Ansätzen für SCR Systeme der nächsten Generation basierend auf der gasförmigen Reagenzdosierung.

Im Einzelnen umfasst dies in der ersten Phase die Analyse eines industriellen Prototypen für die gasförmige Ammoniak (NH_3) Dosierung im Vergleich zur flüssigen AdBlue® Dosierung am Dieselmotor. Das gasförmige NH_3 ist hierbei in der kristallinen Struktur eines Salzes (Strontiumchlorid) eingespeichert. Durch Wärmezufuhr desorbiert das NH_3 und steht so für die Dosierung in das Abgasrohr zur Verfügung. Parallel hierzu wird ein eigenes Dosiersystem für die gasförmige NH_3 Dosierung entwickelt und in Betrieb genommen. Bedingt durch die Versorgung mittels einer NH_3 Gasflasche dient das System primär zur stationären Anwendung am Motorprüfstand. Im nächsten Schritt werden unterschiedliche Düsenkonzepte zur gasförmigen NH_3 Dosierung bei Verwendung von Unterboden SCR Katalysatoren entworfen. Diese werden in Bezug auf ihre Eigenschaften zur Gleichverteilung untersucht und bewertet. Für die Durchführung der Untersuchungen im stationären und transienten Motorbetrieb wird eine Systemanwendung entwickelt, die ein gasförmiges und ein flüssiges Dosiersystems integriert. Zusätzlich ist eine open-loop und eine closed-loop Dosierstrategie appliziert. Dies ermöglicht den direkten Vergleich zwischen der flüssigen und gasförmigen Dosierung zur Identifikation von Systemunterschieden.

In der zweiten Phase wird das theoretische Potential für die Steigerung der De NO_x Performance eines SCRf Systems am Dieselmotor analysiert. Für ein motornahes SCRf System ändern sich die Randbedingungen gänzlich gegenüber einem Unterboden SCR System. Bedingt durch die extrem kurze Misch-

strecke für die Reagenzdosierung und die Vermischung mit dem Abgas von weniger als 10 cm sind speziell hierauf ausgelegte Düsen- und Mischkonzepte erforderlich. Im Rahmen der Arbeit werden unterschiedliche Geometrien für Injektor-Mischer-Kombinationen zur gasförmigen NH_3 Dosierung entworfen und in der Computational Fluid Dynamics (CFD) Simulation in Bezug auf die Qualität der Gleichverteilung und dem Gegendruckverhalten bewertet. Die vielversprechendste Variante wird gefertigt und sowohl am Strömungsprüfstand als auch am Motorprüfstand mit einem industriellen Prototyp einer AdBlue® Injektor-Mischer-Kombinationen verglichen. Anschließend erfolgt eine Parameterstudie zur Bewertung des Einflusses ausgewählter Größen, wie dem Volumen, der Washcoatbeladung und dem Substrat auf die DeNO_x Performance von SCR Katalysatoren.

Als besonderer Aspekt dieser Arbeit wird basierend auf den positiven Ergebnissen des SCR Systems am Dieselmotor die Entwicklungsmethodik auf ein weiteres überstöchiometrisches Verbrennungskonzept, dem magerbetriebenen Ottomotor, übertragen. Hierzu wird in der dritten Phase ein stöchiometrisch betriebener Serienottomotor mit Saugrohreinspritzung auf den Magerbetrieb rekaliibriert. Dies erfolgt mittels Anpassung des Lambda- und Zündwinkelkennfeldes. Mit dem Ziel der größtmöglichen Kraftstoffeinsparung ist die Grenze der Rekalibrierung durch die Aufrechterhaltung einer stabilen Verbrennung bestimmt. Mit den neu applizierten Kennfeldern kann im NEDC ein absoluter Verbrauchsvorteil von bis zu 12 % herausgefahren werden. Nachteilig stellt sich hierbei die NO_x Emission dar. Prinzip bedingt kann der Drei-Wege-Katalysator die Stickoxide bei hohen Sauerstoffanteilen im Abgas nicht reduzieren. Aus diesem Grund kommt daher ein aktives Unterboden SCR System mit der eigens entwickelten gasförmigen NH_3 Dosierung zum Einsatz. Die Ergebnisse der Messungen zeigen, dass für den effektiven Betrieb eines aktiven SCR Systems am untersuchten Mager-Ottomotor die sich einstellenden Nachteile überwiegen. Im Einzelnen können für den Prüfstandmotor folgende Effekte nachgewiesen werden: der eigentliche Temperaturvorteil des ottomotorischen Abgases fällt im Magerbetrieb geringer aus als erwartet, das NO_2/NO_x Verhältnis liegt weit unter dem Niveau des Dieselmotors und lässt sich durch Oxidationsreaktionen über den Drei-Wege-Katalysator nicht ausreichend steigern. Der erforderliche SCR Katalysator bedarf aufgrund der erhöhten NO_x Konzentrationen im Abgas ein weitaus größeres Volumen als für vergleichbare Dieselanwendungen.

Als alternativen Anwendungsfall, im Rahmen der Methodenentwicklung, wird das Anwendungsspektrum um die Funktionalität eines Passiv SCR Systems erweitert. Ziel ist es, die NH_3 bildende Eigenschaft des Drei-Wege-Katalysators zu nutzen. Es werden die Einflussparameter auf die NH_3 Formierung analysiert und basierend hierauf eine Betriebsstrategie entwickelt. Durch einen gesteuerten Wechsel zwischen Mager- und Fettbetrieb sollen die emittierten Stickoxide reduziert werden. Das Funktionsprinzip ist vergleichbar mit NO_x Speicherkatalysator Systemen. Der Unterschied ist jedoch, dass beim Passiv SCR System NH_3 im Fettbetrieb generiert und für die Magerphasen im SCR Katalysator eingespeichert wird. Im Stichversuch am Beispiel des NEDC kann nachgewiesen werden, dass auf diese Weise hinreichend viel Reagenz gebildet wird. Der sich einstellende relative Verbrauchsnachteil liegt bei ca. 2,5-3 % und liegt somit auf einem vergleichbaren Niveau zu Betriebsstrategien mit NO_x Speicherkatalysatoren.

Die in dieser Dissertation entwickelte Methode ermöglichen die NO_x Minderung mittels selektiver katalytischer Reduktion mit gasförmiger NH_3 Dosierung sowohl am Dieselmotor mit Unterboden SCR Katalysator als auch mit motornahem SCR Katalysator. Zudem kann die Methode auch als Basis für die Anwendung von aktiven und passiven SCR Systemen bei magerbetriebenen Ottomotoren genutzt werden.



III. Abstract

The technology of NO_x emission control in diesel engines using selective catalytic reduction was first introduced in 2004 in the commercial vehicle segment for the mass production. In the passenger car segment the first SCR systems were served in 2007. The former and as well the current SCR systems are largely based on the dosage of the liquid reagent AdBlue® in conjunction with the under floor positioned SCR catalyst. The efficiency of the NO_x emission reduction, which is usually achieved with such systems, is sufficient to meet the applicable emission standards today. But with coming into force any new emission standard is expected to come along with a further tightening of the limit value for NO_x emissions. Thus, the limit of the NO_x limit value will be lowered from 180 mg/km to 80 mg/km in 2014 for the passenger car diesel engine. This requires for future low-emission vehicles on the one hand the development of in-engine measures to reduce NO_x raw emissions and on the other hand the development of exhaust gas aftertreatment system, such as the SCR system. Generally current SCR systems have great potential to increase efficiency. One aspect of this is the change of the reagent medium from liquid AdBlue® to gaseous ammonia. This would have the following advantages: possibility of dosage the reagent at lower exhaust temperatures by eliminating the need to evaporation and subsequent hydro- and thermolytic reactions. This enables the possibility of using the low-temperature activity and increased NH₃ storage capacity of the SCR catalyst. In addition the formation of fouling can be prevented. Another aspect is the functional integration of SCR coatings on diesel particulate filters (DPF). These so-called SCRf catalysts have the advantage that they can be installed in place of the DPF close to the engine position. The catalyst would reach its light-off temperature much faster after a cold engine start and could earlier convert NO_x. A secondary effect would be that the heat-up phase for heating the catalyst could be shortened and thus can achieve additional fuel savings and reduction of CO₂ emissions.

The motivation for this thesis is derived from the described disadvantages of SCR systems which are currently in the field and from the need to make possible potentials available with new methods. Therefore the topic of this work is the development of methods and the detailed system analysis of innovative approaches for SCR systems of the next generation based on the gaseous reagent dosing.

Specifically this includes in the first phase a detailed analysis of a prototype for the gaseous NH₃ dosing system compared to the liquid AdBlue® dosing at the diesel engine. The NH₃ is absorbed in a salt structure and desorbs by heat. Thus NH₃ is gaseous available for dosing into the exhaust pipe. In parallel, a separate feed system for the gaseous NH₃ dosage is developed and put into operation. Due to the supply by means of a NH₃ gas bottle, the system is primarily used for stationary applications at the engine test bed. As a next step, different nozzle concepts for gaseous NH₃ dosage using under floor SCR catalysts are designed. These are examined and evaluated in terms of their properties to the homogeneous distribution. For the use of the SCR system in transient engine operation, a system application is developed, which includes a closed loop dosing strategy and enables the dual operation of a gaseous and liquid dispensing system. Subsequently, a direct comparison between the liquid and gaseous dosage is carried out for the identification of system differences.

In the second phase, the theoretical potentials for optimizing the DeNO_x performance of a SCRf system at the diesel engine are analyzed. The principle is based on the functional integration of diesel particulate filter with an SCR catalyst. The DPF is provided with a SCR coating. The SCRf catalyst is installed close to the engine in the normal position so that the higher temperature level favors the NO_x reduction. For the application the boundary conditions changes completely. Due to the extremely short mixing section for reagent dosage and mixing with the exhaust gas of less than 10 cm innovative approaches for mixing elements are needed. As part of the work different geometries for injector-mixer combinations for gaseous NH₃ dosage are designed and evaluated in terms of their quality of homogeneous distribution and the backpressure by CFD simulation. The most promising variant is made and compared with an industrial prototype of an AdBlue® injector-mixer combination both on the flow

bench and on the engine test bed. Subsequently, a parametric study is carried out to evaluate the influence of selected variables such as the volume, the washcoat and the substrate on the DeNO_x performance of SCRF catalysts.

As a special aspect of this work the findings are transferred to another hyperstoichiometric combustion system. In the third phase a stoichiometric gasoline engine with port injection will be recalibrate for lean burn operation. This is done by adjusting the values for lambda and the ignition angle. With the applied maps a consumption advantage can be achieved up to 12 % for the NEDC. Adversely is the NO_x emission. This is due to the three-way catalyst (TWC) which cannot reduce nitrogen oxides with high proportions of oxygen in the exhaust gas. Therefore an active SCR system with an under floor SCR catalyst is added. The results of the measurements revealed that for the effective operation of an active SCR on the examined lean gasoline engine the disadvantages prevail. In particular the following effects could be detected for the test engine: the expected temperature of gasoline engine exhaust gas in lean-burn mode is lower than expected, the NO₂/NO_x ratio is far below the level of the diesel engine and can be increased through oxidation reactions about TWC insufficient. The required SCR catalyst needed due to the increased NO_x concentrations in the exhaust must be nearly double that large volume as for comparable diesel applications.

As an alternative application, as part of the method development, the application range is extended with the functionality of a passive SCR system. The aim is to use the NH₃ forming property of the TWC. The influence of parameters on the formation of NH₃ is analyzed and based on this an operational strategy is developed. By an intelligent alternation between lean and rich operation to the emitted nitrogen oxides can be reduced. The functional principle is similar to LNT systems. However, in the rich operation mode NH₃ is generated and stored for the lean operation mode in the SCR catalyst. In case of the NEDC it can be shown that in this way a sufficiently large amount of reagent can be formed. The resultant relative consumption disadvantage is about 2,5-3 %, which is at a comparable level to operating strategies with LNT systems.

The method developed in this work allow the selective catalytic reduction of NO_x by using gaseous NH₃ dosing both the diesel engine with under floor SCR catalyst and with close-coupled SCRF catalyst. Furthermore the method can be used as a basis for the application of active and passive SCR systems in lean burn gasoline engines.



IV. Inhaltsverzeichnis

I.	Vorwort	i
II.	Kurzfassung	iii
III.	Abstract	vi
IV.	Inhaltsverzeichnis	ix
1	Einleitung	1
2	Stand der Technik: Schadstoffentstehung und Emissionsminderung	4
2.1	Diesel- und Ottomotorische Schadstoffentstehung	4
2.1.1	Kohlenwasserstoffe HC	5
2.1.2	Kohlenstoffmonoxid CO	5
2.1.3	Kohlenstoffdioxid CO ₂	6
2.1.4	Stickoxid NO _x	6
2.1.5	Ammoniak NH ₃	11
2.1.6	Partikel PM	12
2.2	Emissionsminderung durch Abgasrückführung	13
2.2.1	Interne und externe AGR	13
2.2.2	Hochdruck und Niederdruck AGR	14
2.3	Emissionsminderung durch Abgasnachbehandlung	15
2.3.1	Dieseloxydationskatalysator	15
2.3.2	Dieselpartikelfilter	17
2.3.3	Drei-Wege-Katalysator	22
2.3.4	NO _x Speicherkatalysator	23
2.3.5	Selektive-Katalytische-Reduktion	24
3	Umfang und Ziel der Arbeit	32
4	Experimenteller Versuchsaufbau	34
4.1	Motorprüfstand: Dieselmotor und Mager-Ottomotor	34
4.2	Strömungsprüfstand	35
4.3	Angewandte Methoden der NO _x Konzentrationsmessung	36
5	Systembetrachtung und Entwicklungsmethodik zur NO _x Emissionsminderung mittels SCR am Dieselmotor	38
5.1	Dosiersystem: flüssiges oder gasförmiges Reagenzmedium	38
5.1.1	Dosiersysteme für gasförmiges NH ₃	40
5.1.1.1	Systemverhalten bei Füllstandsminierung der Start-Up Unit	44
5.1.1.2	Systemverhalten bei Befüllung der Start-Up Unit	48
5.1.1.3	Systemverhalten im dynamischen Betrieb	51
5.2	Auslegung und Untersuchung unterschiedlicher NH ₃ Düsengeometrien	54
5.2.1	NH ₃ Düsengeometrie	55
5.2.2	Methodik der Gleichverteilungsvermessung	56
5.2.3	Ergebnis der Gleichverteilungsmessung	60

5.3	Entwicklung einer Dosierstrategie für den transienten Motorbetrieb.....	65
5.3.1	Anforderungen an die Sensorik für NO _x und NH ₃ Messung	67
5.3.2	Methodischer Applikationsansatz der Dosierstrategie	71
5.4	Untersuchung zur flüssigen AdBlue® und gasförmigen NH ₃ Reagenzdosierung	73
5.5	Potentialuntersuchung zur NO _x Emissionsminderung mittels SCRF	80
5.5.1	Strömungsanalyse und Entwicklung eines NH ₃ Dosiermoduls für SCRF Systeme	82
5.5.1.1	Experimentelle Untersuchung der Abgasströmung vor dem SCRF Katalysator... ..	82
5.5.1.2	Anforderungen an ein NH ₃ Dosiermodul für motornahe SCRF Systeme	84
5.5.1.3	Auslegung und Bewertung mittels CFD Strömungssimulation	85
5.5.1.4	Ausgeführte Geometrien für ein NH ₃ Dosiermodul	87
5.5.1.5	Ergebnisdarstellung der CFD Simulation	88
5.5.2	Parameterstudie zur Identifikation der Betriebseigenschaften eines SCRF Systems.....	95
5.5.2.1	Auswirkung der primären Einflussparameter.....	95
5.5.2.2	Ergebnisdarstellung der DeNO _x Performance	100
5.6	Kapitelzusammenfassung.....	103
6	NO_x Emissionsminderung mittels SCR am Mager-Ottomotor.....	106
6.1	Rekalibrierung: von stöchiometrisch zu mager.....	106
6.1.1	Vergleich zwischen stöchiometrischem Betrieb und Magerbetrieb	108
6.1.2	Vergleich der NO _x Rohemissionen: Dieselmotor vs. Mager-Ottomotor.....	109
6.2	Aktives SCR System	109
6.3	Passives SCR System	113
6.3.1	Identifikation der stationären NH ₃ Bildungsvorgänge mittels TWC	114
6.3.2	NH ₃ Bildung mit vorgesteuertem Lambda im transienten Testzyklus.....	118
6.3.3	Auslegung einer Betriebsstrategie für transiente Testzyklen.....	119
6.3.4	Plausibilisierung der Betriebsstrategie	122
6.4	Kapitelzusammenfassung.....	124
7	Zusammenfassung und Ausblick	126
V.	Literaturverzeichnis	xiii
VI.	Symbole und Abkürzungen	xxii
VII.	Anhang.....	xxv





1 Einleitung

Vor ungefähr 120 Jahren, nachdem Nicolaus August Otto ein Patent für seinen Benzin-Verbrennungsmotor erwarb, gelang es Rudolf Diesel am 10. August 1893 den ersten Prototypen seines Motors aus eigener Kraft laufen zu lassen. Dies war der Anbeginn einer Entwicklung, die in der Folge unsere Gesellschaft um einen weiteren Freiheitsgrad der individuellen Mobilität bereicherte. Als ein Indiz der anhaltenden Beliebtheit des Automobils als Fortbewegungsmittel ist die seit Jahren steigende Zahl an zugelassenen Fahrzeugen anzusehen. Entsprechend den veröffentlichten Zahlen des Kraftfahrt-Bundesamtes stieg allein in Deutschland die Zahl von 50,18 Mio. Kraftfahrzeugen im Jahre 2010 auf 50,9 Mio. im Jahre 2011 an. Hierbei entfällt der Großteil des Fahrzeugbestandes auf Fahrzeuge mit Verbrennungsmotoren (Otto 72 %, Diesel 26,6 %). Nach einer aktuellen Pressemitteilung des Kraftfahrt-Bundesamtes [01] lag der Anteil bei neuzugelassenen Fahrzeugen im ersten Quartal 2012 bei 47,9 % Dieselfahrzeugen. Nur ein sehr geringer Anteil wird durch Elektrofahrzeuge oder Fahrzeuge mit alternativen Kraftstoffen abgedeckt (Abbildung 1-1). Dies zeigt, dass der Verbrennungsmotor nach wie vor das dominierende Motorkonzept in den heutigen Fahrzeugen darstellt. Gleichzeitig wird in Deutschland der Dieselmotor auch im PKW Segment zunehmende Marktdurchdringung erreichen.

	Anzahl [-]	Anteil [%]
Benzin	126756	50.69
Diesel	119444	47.76
Hybrid	2401	0.96
Flüssiggas	898	0.36
Erdgas	401	0.16
Elektro	179	0.07

Abbildung 1-1: PKW Neuzulassungen in Deutschland, September 2012, [01]

Die Emissionen der realen Verbrennung bei einem Verbrennungsmotor, egal ob Diesel- oder Ottomotor, bestehen zu einem sehr geringen Anteil von weniger als 1 % aus Stoffen, die als Schadstoffe klassifiziert sind und bei ihrem Eintrag in die Atmosphäre nachteilige Auswirkungen auf Mensch und Umwelt haben. Vor dem Hintergrund der steigenden Anzahl an Emittenten gilt es Maßnahmen zu ergreifen, um das Ausmaß der Luftverunreinigung nachhaltig zu reduzieren. Hierfür ist es erforderlich, dass einerseits der Gesetzgeber seiner Verantwortung zum Schutz von Mensch und Umwelt nachkommt und andererseits die Technologien zur Emissionssenkung kontinuierlich weiterentwickelt und optimiert werden. Im Falle des Dieselmotors können durch den Einsatz eines Dieseloxydationskatalysators (DOC) größtenteils die Kohlenwasserstoffe und Kohlenmonoxide durch Oxidationsreaktionen in Kohlendioxid und Wasser umgewandelt werden. Die Emission des im realen Verbrennungsprozess gebildeten Rußes kann bei Verwendung eines geschlossenen Dieselpartikelfilters (DPF) im Abgasnachbehandlungssystem zu annähernd 100 % vermieden werden. Die nachhaltige Minderung der Stickoxidemissionen stellt aktuell die größte Herausforderung der Abgasnachbehandlung in der Forschung und Entwicklung dar. Erste Ansätze mittels Selektiver-Katalytischer-Reduktion (SCR) im Abgassystem von Kraftfahrzeugen gehen in die Mitte der 1990er Jahre zurück [02]. Das Problem liegt in dem überstöchiometrischen Abgas des Dieselmotors mit einem relativ hohen Restsauerstoffanteil. Für die Reduktion der Stickoxide ist daher eine zusätzliche Komponente im Abgasnachbehandlungssystem erforderlich. Im Laufe der letzten Dekade wurden SCR Systeme entwickelt, die auf unterschiedlichen Technologien basieren. Spätestens mit Inkrafttreten der EURO V Norm im LKW Segment haben sich bei den SCR Systemen der ersten Generation das Konzept mit einem separaten SCR Katalysator im Unterbodenbereich und die Dosierung von AdBlue® in das Abgasrohr vor eben diesem SCR Katalysator durchgesetzt. Es ist heute bereits absehbar, dass SCR Systeme zukünftiger Generationen anders aufgebaut sein müssen. Diese werden sich in ihrer Infrastruktur, sprich den verwendeten Systemkomponenten, differenzieren. So hat das heute gängige Reagenzmittel AdBlue®, eine harnstoffwässrige Lösung, die nachteilige Eigenschaft bei Temperaturen unter -11 °C zu gefrieren. Zudem ist die NH₃ Speicherdichte der flüssigen Reagenzmedien den Feststoffmedien unterlegen. Hier bietet sich die Nutzung des Potentials einer direkten gasförmigen NH₃ Dosierung an. Ein weiterer Aspekt ist die DeNO_x Performance des Abgasnachbehandlungssystems, die stark von dem Temperaturniveau mit dem es betrieben wird abhängig ist. Entsprechend ist das schnelle Erreichen der Light-Off-Temperatur nach einem Kaltstart ein

wichtiges Applikationsziel. Doch gerade in einem Zertifizierungszyklus mit niedrigem Lastprofil, wie dem NEDC, bedarf es zusätzlicher Maßnahmen, wie z.B. Heizstrategien. Zusätzlich können durch Systemintegrationslösungen Funktionalitäten vereint werden. So könnten zukünftige DPF mit SCR Beschichtungen versehen sein. Das Applikationsziel ist hierbei die Funktionalität des NO_x Emissionsminderung in den motornahen Bereich an die Position des DPF zu bringen, um so den positiven Effekt des dort herrschenden höheren Temperaturniveaus ausnutzen zu können.

Moderne Ottomotoren erfahren ebenfalls einen Wandel. Der saugrohreinspritzende stöchiometrisch betriebene Ottomotor wird zunehmend von alternativen Konzepten, wie z.B. dem direkteinspritzenden Mager-Ottomotor abgelöst. Dies hat zur Konsequenz, dass das Abgasnachbehandlungssystem den neuen Bedingungen angepasst werden muss. Bislang hat ein Drei-Wege-Katalysator (TWC) die Schadstoffkomponenten (HC, CO, NO_x) oxidieren, bzw. reduzieren können. Mit der in der Teillast überstöchiometrischen Verbrennung kann das Potential der Verbrauchsminderung genutzt werden. Allerdings steigt gleichzeitig der Sauerstoffgehalt des Abgases und macht, ähnlich dem Dieselmotor, zusätzliche Maßnahmen zur Stickoxidreduktion erforderlich. Das hier gängige DeNO_x Konzept ist der Einsatz eines NO_x Speicherkatalysators. Dieses hat jedoch den nachteiligen Effekt, dass eine große Abhängigkeit in Bezug auf die Kraftstoffqualität vorliegt. Denn bei zu hohem Schwefelanteil kann es zu einer Vergiftung des Katalysators kommen. Zudem macht der Bedarf an Seltenen Erden für die Beschichtung diese Technologie sehr teuer. Ähnlich der Regeneration des Dieselpartikelfilters erfordert auch der NO_x Speicherkat eine zyklische Regeneration. Hierzu wird der Betriebsmodus von mager auf fett umgeschaltet, was wiederum mit Nachteilen im Kraftstoffverbrauch verbunden ist. Ein SCR System stellt somit eine legitime Alternative dar. Darüber hinaus bietet die Konstellation des unterstöchiometrisch betriebenen Ottomotors in Verbindung mit einem Drei-Wege-Katalysator die Möglichkeit der on-board NH₃ Generierung. Damit ist die Grundlage für die Applikation eines Passiv SCR Systems gegeben.

Die Auswirkungen der NO_x Emission spiegeln sich in den städtischen NO₂ Immissionen wider. Daher konzentriert sich die aktuelle politische und gesellschaftliche Diskussion in Bezug auf die Luftverunreinigung zunehmend auf das toxische Stickstoffdioxid (NO₂).

Stickstoffdioxid wird Problem Nummer eins

Umweltministerin Gönner: Grenzwerte sind über Jahre nicht einzuhalten – Land muss Fristverlängerung bei EU beantragen

Quelle: Rhein-Neckar-Zeitung, 04.03.2010

Laut einer Veröffentlichung des Umweltbundesamtes im Jahr 2010 [03] ist die absolute NO_x Emission in den letzten 15 Jahren stetig zurückgegangen, aber die absolute NO₂ Immission ist dagegen gleich geblieben. Erklären lässt sich dies mit dem in den vergangenen Jahren steigenden NO₂/NO_x Verhältnis und dies obwohl die vom Motor emittierten Stickoxide größtenteils aus NO bestehen. Eine mögliche Ursache hierfür sehen [04, 05] in der Abgasnachbehandlungsanlage moderner Dieselfahrzeuge. Mit Inkrafttreten der Euro 2 Abgasnorm im Jahr 1996 wurden annähernd alle neuen Dieselfahrzeuge mit einem Dieseloxydationskatalysator ausgestattet. Dieser hat aufgrund seiner oxidierenden Charakteristik, neben den zuvor beschriebenen Funktionen, die Eigenschaft durch die aufgebrachte platinhaltige Edelmetallbeschichtung das vom Motor emittierte NO zu NO₂ zu oxidieren. Jahre später mit der Einführung von katalytisch beschichteten Dieselpartikelfilter kam eine weitere Komponente hinzu, die bewusst NO zu NO₂ oxidiert. Was in diesen Fall zur Verbesserung der passiven Rußregeneration beitragen soll. Entsprechend den Entwicklungen der letzten Jahre könnte eine Verbindung zwischen den steigenden Zulassungszahlen, den Abgasemissionen der Fahrzeuge und den erhöhten NO₂ Messwerten insbesondere an verkehrsnahen Luftmessstationen hergestellt werden.

Mit Inkrafttreten der 22. Verordnung des Bundes-Immissionsschutzgesetz (22. BImSchV) [06] und der 1. Tochterrichtlinie (1999/30/EG) [07] zum Schutz und Erhalt der menschlichen Gesundheit wer-

den die zulässigen Immissionswerte geregelt. Als Luftqualitätsgrenzwert für Stickstoffdioxid (NO₂) gilt ab dem 01.01.2010 ein Einstundenmittelwert (MW1) von 200 µg/m³. Dieser darf 18-mal im Jahr überschritten werden. Zudem muss der Jahresmittelwert (JMW) unter 40 µg/m³ liegen. Im Jahr 2011 wurde dieser an 57 % aller verkehrsnahen Messstationen überschritten [08].

Bis sich neue Technologieträger, wie beispielsweise SCR Systeme, nachweislich auf eine Reduzierung speziell von NO₂ Immissionen auswirken, wird es in Abhängigkeit der Felddurchdringung dieser Systeme aller Voraussicht nach noch Jahre dauern.

2 Stand der Technik: Schadstoffentstehung und Emissionsminderung

2.1 Diesel- und Ottomotorische Schadstoffentstehung

Einleitend bedarf es der Definition des Wortes „Schadstoff“. Ein Stoff ist nicht per se ein Schadstoff, sondern wird erst zu einem, wenn er eine unerwünschte (toxische) Wirkung auf Mensch und Umwelt ausübt [09]. Nach Paracelsus ist es erst die Menge eines Stoffes, die ihn zu einem Schadstoff werden lässt. Der Ursprung für die Bildung von Schadstoffen im motorischen Abgas ist primär auf den motorischen Verbrennungsprozess zurückzuführen. Hierbei wird die im Kraftstoff gebundene chemische Energie bei der Verbrennung mit der angesaugten Luft freigesetzt. Ein Charakteristikum für die Güte der Verbrennung ist die Qualität des Kraftstoffes und die Qualität der Gemischbildung. Sowohl der Diesel- als auch der Ottokraftstoff bestehen in ihrer reinsten Form aus langkettigen C_xH_y Verbindungen [10]. Mit dem in der Ansaugluft vorwiegend vorhandenen Stickstoff (N_2) und Sauerstoff (O_2) bildet sich unter idealen Voraussetzungen als Produkt des Verbrennungsprozesses Kohlendioxid (CO_2) und Wasser (H_2O). Im realen Verbrennungsprozess bilden sich noch weitere Stoffe, die vom Gesetzgeber in die Klasse der Schadstoffe eingestuft werden und deren Emission limitiert ist. In Abbildung 2-1 ist beispielhaft für einen Euro 5 Dieselmotor die Abgaszusammensetzung in einem NEDC dargestellt. Der sich einstellende Massenanteil an Komponenten, die als Schadstoffe klassifiziert werden liegt im Bereich von 0,1 %. Vergleichend hierzu beträgt der Schadstoffanteil im Rohabgas des stöchiometrisch betriebenen Ottomotors etwa 1 % [11].

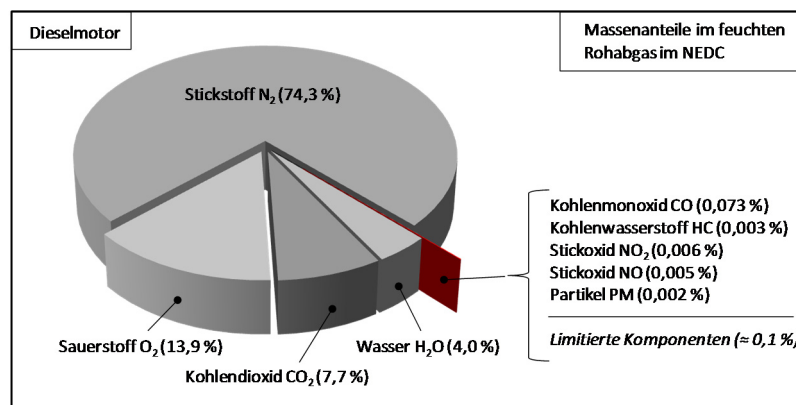


Abbildung 2-1: Abgaszusammensetzung für einen Dieselmotor im NEDC (nach [12])

Aufgrund der überstöchiometrischen Betriebsweise des Dieselmotors liegt der Sauerstoffanteil im Abgas wesentlich höher als beim $\lambda=1$ betriebenen Ottomotor. Hier beträgt der Restsauerstoffanteil nahezu 0 %. Dies hat insbesondere Auswirkungen auf die Bildung von Oxidationsprodukten, wie bspw. CO. Die CO Rohemission des Ottomotors ist aufgrund des Sauerstoffmangels im Vergleich zum Dieselmotor wesentlich höher.

Es gibt eine Vielzahl an Einflussgrößen, die für die Schadstoffentstehung verantwortlich sind. Hierzu zählen auch die Umweltbedingungen, in denen der Verbrennungsmotor - sei es als Fahrmotor oder als Stationärmotor - betrieben wird. So hat zum Beispiel der Feuchtegehalt der Ansaugluft Auswirkungen auf die Bildung der Stickoxide. Umso höher die relative Luftfeuchtigkeit ist, desto geringer sind die NO_x Emissionen [13, 14].

Des Weiteren kann die Schadstoffentstehung durch innermotorische Maßnahmen beeinflusst werden. Hierzu zählen vor allem die konstruktiven Größen, die Ausführung der Einspritzung und die Gestaltung der Luftführung (Tabelle 2-1).

Tabelle 2-1: Innermotorische Einflussgrößen auf die Schadstoffentstehung beim Dieselmotor (nach [15])

Konstruktive Größen	Einspritzung	Luftführung
Brennraumgestaltung	Variation Einspritzbeginn	Innere/äußere Abgasrückführung
Düsenlochdurchmesser	Anzahl Vor-/Nacheinspritzung	AGR-Kühlung
Düsenlochzahl	Einspritzverlauf	Aufladung
Spritzwinkel	Einspritzdruck	Ladeluftkühlung
Verdichtungsverhältnis	Einspritzmenge	Ladungsbewegung im Brennraum
	Kraftstoffzerstäubung	
	Kraftstoffqualität	

2.1.1 Kohlenwasserstoffe HC

Es gibt eine Vielzahl an Kohlenwasserstoffverbindungen, die im motorischen Abgas enthalten sind. Mehr als 200 Einzelverbindungen werden zu den unverbrannten Kohlenwasserstoffen zusammengefasst. Dies sind Verbrennungsprodukte aus Kraftstoff- und Schmierölverbindungen [02, 16]. Ursache hierfür ist das Vorliegen eines lokal sehr fetten oder aber auch sehr mageren Gemisches. Beim Ottomotor ist in den Bereichen der Zündgrenzen ein Anstieg der unverbrannten Kohlenwasserstoffen nachweisbar. Prinzipiell lassen sich drei Bildungsmechanismen unterscheiden:

Flame-Quenching: Vorzeitiges Erlöschen der Flamme innerhalb des Brennraums aufgrund eines lokal zu fetten oder zu mageren Gemisches bevor der gesamte zugeführte Kraftstoff umgesetzt wurde. Ursache hierfür kann eine inhomogene Gemischverteilung sein, besonders bei direkteinspritzenden Brennverfahren. Der Anteil an den Gesamt-HC im Rohabgas resultierend aus Flame-Quenching beträgt weniger als 10 % [17].

Wall-Quenching: Vorzeitiges Erlöschen der Flamme an der Brennraumwand bedingt durch eine stark abfallende Gemischtemperatur als Folge einer Wärmeableitung über die Wand. Der HC-Volumenanteil durch Wall-Quenching an den Gesamt-HC beträgt ca. 10 % [18].

Bulk-Quenching: Durch sehr schnelles Diffundieren von H- und O-Atomen, sowie OH-Radikalen aus der Reaktionszone, können diese von der Flamme energetisch nicht umgesetzt werden – ähnlich dem Flame-Quenching [16].

Für den Menschen sind vor allem die hoch krebserregenden polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAK) als kritisch einzustufen. Diese können sich an Partikel binden und werden so über die Atemwege aufgenommen.

2.1.2 Kohlenstoffmonoxid CO

Kohlenstoffmonoxid ist ein farbloses, geruchloses und geschmackloses Gas. Auf den Menschen wirkt es als starkes Atemgift und beeinträchtigt den Sauerstofftransport im menschlichen Körper. Bereits bei niedrigen Vergiftungen von 2-5 % CO-Hämoglobin kann es zu Auswirkungen auf das zentrale Nervensystem kommen. Bei höheren Konzentrationen kann es zum Tod führen. Die Symptome hierbei sind ähnlich wie bei einer Erstickung.

Die Bildung im Motor erfolgt bei der Verbrennung der Kohlenwasserstoffe unter Luftmangel. Infolge von Inhomogenität im Brennraum kommt es auch beim Dieselmotor trotz der globalen Überstöchiometrie zu Zonen mit lokalem Sauerstoffmangel. Diese Bereiche in unmittelbarer Nähe zu den Kraftstofftropfen führen zu einer unvollständigen Verbrennung mit CO Bildung. Bei überstöchiometrischen Motorkonzepten kann es in der Expansionsphase zu einer oxidierenden Nachreaktion von CO zu CO₂ kommen.

2.1.3 Kohlenstoffdioxid CO₂

Kohlenstoffdioxid ist ein unbrennbares, saures, farb- und geruchloses Gas, das sich gut in Wasser löst. Es ist ein natürlicher Bestandteil der Atmosphäre. In den letzten fünf Dekaden ist ein kontinuierlicher Anstieg der gemittelten globalen Konzentration von 310 ppm (Jahr 1960) auf eine aktuelle Konzentration von 390 ppm (Jahr 2011) messbar [19, 20]. Kohlenstoffdioxid wird bei der Verbrennung von fossilen Energieträgern gebildet. Als Bestandteil des motorischen Abgases nimmt es, am Beispiel des Dieselmotors, den drittgrößten Anteil ein (vgl. Abbildung 2-1). Es lässt sich eine Äquivalenzrechnung für den eingesetzten Kraftstoff und die resultierende CO₂ Emission durchführen.

Diesel	Benzin	Benzin (E85)
1 l Krfstst \triangleq 2,62 kg CO ₂	1 l Krfstst \triangleq 2,32 kg CO ₂	1 l Krfstst \triangleq 1,63 kg CO ₂

Die tatsächlich gebildete CO₂ Menge hängt stark von der Kraftstoffqualität ab, insbesondere von dem C-H-O Verhältnis. Es wird jedoch bei den Emissionen von Fahrzeugen nicht als Schadstoff klassifiziert und es gibt daher auch keinen definierten Grenzwert für CO₂ in einer Abgasnorm. Aufgrund seiner klimaschädlichen Wirkung bei weiter steigenden Konzentrationen wurde 2009 die EU-Verordnung zur Verminderung der CO₂ Emissionen von Personenkraftwagen erlassen [107]. Der Kernpunkt ist die Verpflichtung der EU zur Reduzierung der Treibhausgasemission um mindestens 20 % (gegenüber dem Stand von 1990). Für die PKW Emissionen bedeutet dies, dass ab 2012 ein CO₂ Emissionsdurchschnitt für alle neu zugelassenen PKW von 130 g_{CO2}/km festgelegt wird. Das langfristige Ziel ist eine CO₂ Emission für die Neuwagenflotte von 95 g_{CO2}/km zu erreichen. Dies entspricht 3,6 l/100 km für den Diesel- und 4,1 l/100 km für den Ottomotor.

2.1.4 Stickoxid NO_x

In der Literatur finden sich mehrere Quellen, wie bspw. [04, 21, 22], die unterschiedliche Interessengruppen aus Politik, Umwelt-, und Automobilverbänden repräsentieren und im Gleichklang mit einer Veröffentlichung des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit [21] aus dem Jahre 2010 sind. Die Stickoxidbelastung, insbesondere die NO₂ Belastung, in Städten lässt sich in vereinfachter Darstellung auf die folgenden drei Emissionsquellen herunterbrechen (Abbildung 2-2):

- Lokaler Straßenverkehr: ca. 50 %
→ davon ca. 80 % durch Dieselfahrzeuge
- Städtischer Hintergrund: ca. 40 %
- ländlicher Hintergrund ca. 10 %

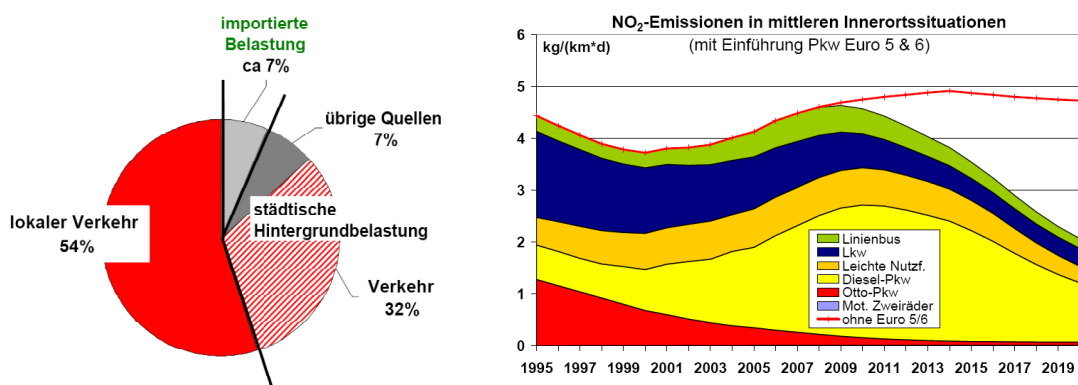


Abbildung 2-2: Links: Ursachen der NO₂ Immission [22], Rechts: Anteile der Fahrzeugklassen an der NO₂ Emission [04]

Die Stickoxide NO_x bilden das Produkt einer Oxidationsreaktion zwischen den beiden in der bodennahen Atmosphäre am meisten vorkommenden Gasen, dem Stickstoff N_2 (78,08 %) und dem Sauerstoff O_2 (20,94 %). Insgesamt sind die folgenden acht unterschiedlichen Oxide des Stickstoffs bekannt: [14].

NO Stickstoffmonoxid	NO₂ Stickstoffdioxid	NO₃ Stickstofftrioxid	N₂O Distickstoffmonoxid
N₂O₃ Distickstofftrioxid	N₂O₄ Distickstoffetroxid	N₂O₅ Distickstoffpentoxid	N₂O₆ Distickstoffhexoxid

Die allgemeine Summenformel lautet N_yO_x . Die für den motorischen Verbrennungsprozess relevanten Stickoxide sind das NO und das NO_2 . Diese werden in der Literatur in einem Sammelbegriff als NO_x zusammengefasst. Aufgrund des qualitativen Vorhandenseins sind für die verbrennungsmotorische Emissionsbetrachtung primär nur das Stickstoffmonoxid (NO) und das Stickstoffdioxid (NO_2) von Relevanz. In der Nachreaktionszone und in der Abgasnachbehandlungsanlage des Fahrzeuges kann des Weiteren noch N_2O gebildet werden.

Stickstoffmonoxid ist ein farb-, geruch- und geschmackloses Gas. Es ist brandfördernd und wirkt in Verbindung mit Feuchtigkeit korrosiv. Werkstoffe, die in Kontakt mit NO stehen, sollten daher kein Messing oder Kupfer, bzw. Kupferlegierungen enthalten.

Stickstoffdioxid NO_2 ist ein rotbraunes Gas, das auf die Atemwege eine Reizwirkung ausübt [13]. In hohen Konzentrationen ist es stechend riechend, in geringen Konzentrationen aber kaum wahrnehmbar [23]. Es wird nach EU Gefahrenstoffkennzeichnung EG 1272/2008 [24] als brandfördernd und sehr giftig eingestuft.

NO_x Bildung im motorischen Verbrennungsprozess

Für die Bildung des Stickstoffmonoxids können primär vier unterschiedliche Reaktionswege angegeben werden [25]:

- Brennstoffabhängiges Stickstoffmonoxid
- Thermisches Stickstoffmonoxid
- Promptes Stickstoffmonoxid
- N_2O -Mechanismus

Die **brennstoffabhängige NO Bildung** beruht auf der Oxidation des im Kraftstoff chemisch gebundenen Stickstoffs mit Sauerstoff. Die erforderliche Reaktion findet im Wesentlichen in der Hauptverbrennungszone (Flammenfront) statt. Aufgrund des geringen Anteils an gebundenem Stickstoff im Dieselmotorkraftstoff ist der Anteil an gebildetem Brennstoff-NO gemessen am Gesamtstickoxid eher zu vernachlässigen [02].

Eine NO Bildung, die nicht direkt an den Verbrennungsvorgang gekoppelt ist, stellt die **thermische Stickoxidbildung** dar. Diese findet vornehmlich in der Nachreaktionszone statt.



Nach Zeldovic bildet sich Stickstoffmonoxid aus einer Reihe von Elementarreaktionen, wobei nicht molekularer, sondern atomarer Sauerstoff mit den Stickstoffmolekülen reagiert [02].

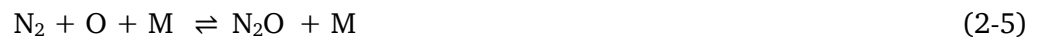


Generell ist die Bildung von Stickoxid stark temperaturabhängig. So führt die Verdopplung der Reaktionstemperatur (2500 auf 5000 K) zu einer 1000 fach höheren NO Bildung. In den Dimensionen der motorischen Verbrennung hat eine Anhebung der Verbrennungstemperatur von 2000 auf 2500 K eine Steigerung der gebildeten thermischen NO um das 50 fache zur Folge [26]. Im Wesentlichen hängt die Bildung des thermischen Stickstoffmonoxids von drei maßgeblichen Größen ab:

- Verbrennungstemperatur
- Verweildauer
- Sauerstoffangebot

Ein drittes NO Bildungsmodell wurde von Fenimore (1979) beschrieben. Besonders in sauerstoffarmen Vormischflammen bilden sich Kohlenwasserstoff-Radikale, zumeist aus dem Vorläufer Ethin (Acetylen, C_2H_2). Die HC Radikale greifen den molekularen Stickstoff der Luft an und bilden aufgrund der geringen Aktivierungsenergie das **prompte NO** schon bei Temperaturen ab etwa 1000 K.

Die Bildung von Prompt-NO wird zum einen durch die geminderte Bildung von HC aufgrund eines mageren Brennstoff-Luft-Gemisches gehemmt. Zum anderen wird durch niedrige Temperaturen die Bildung von thermischen NO unterdrückt. Dies sind die Voraussetzungen, dass NO über den **N_2O -Mechanismus** gebildet werden kann. Entsprechend dem Zeldovich-Mechanismus wird N_2O analog zu der ersten und geschwindigkeitsbestimmenden Reaktion gebildet (Formel (2-5)). Der in der Formel enthaltene Faktor M fasst die aus der Reaktion unverändert hervorgehendem Stoßpartner zusammen.



Das über N_2O gebildete NO ist bspw. die wesentliche NO Quelle bei der mageren vorgemischten Verbrennung in Gasturbinen. Im verbrennungsmotorischen Bereich ist diese Art der NO Bildung vor allem bei magerbetriebenen Ottomotoren und bei Dieselmotoren mit hohen Spitzendrücken nachweisbar [27].

Wird das Simultangleichgewicht zwischen NO und NO_2 betrachtet, zeigt sich, dass bei Temperaturen unterhalb von 200 °C das Gleichgewicht entsprechend Formel 2-9 nahezu vollständig auf der Seite von NO_2 liegt (Abbildung 2-3). Oberhalb einer Temperatur von ca. 200 °C setzt die Zerfallsreaktion hin zu NO und O_2 ein. In einem Temperaturbereich von 200-500 °C lässt sich die Bildung von N_2O als Folge des NO_2 Zerfalls nachweisen [28]

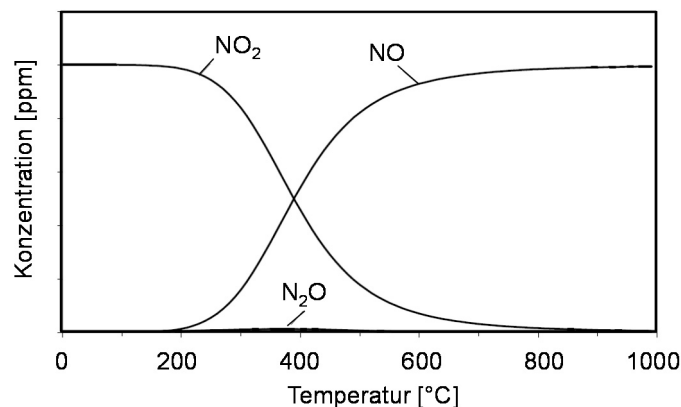


Abbildung 2-3: Simultangleichgewicht zwischen NO, N_2O und NO_2 als Funktion der Temperatur [28]

Die Bildung des Stickstoffdioxids NO_2 lässt sich vereinfacht auf den Vorgang der Oxidation des primär gebildeten Stickstoffmonoxids NO gemäß Reaktionsgleichung (2-7) zurückführen:



Entsprechend den beschriebenen NO_x Bildungsmodellen treten die höchsten Stickstoffdioxidemissionen im Bereich niedriger Drehzahlen und niedriger Last bei geringen Verbrennungstemperaturen auf.

Die theoretischen Betrachtungen spiegeln sich in der Analyse der NO_x Rohemissionen eines modernen DI-Diesel- und eines stöchiometrisch betriebenen MPFI-Ottomotors wider. In der differenzierten Betrachtung der NO_x Kennfelder kann nachgewiesen werden, dass der Dieselmotor in seinen NO_x Rohemissionen ein höheres NO_2/NO_x Verhältnis aufweist, als der stöchiometrisch betriebene Ottomotor (Abbildung 2-4).

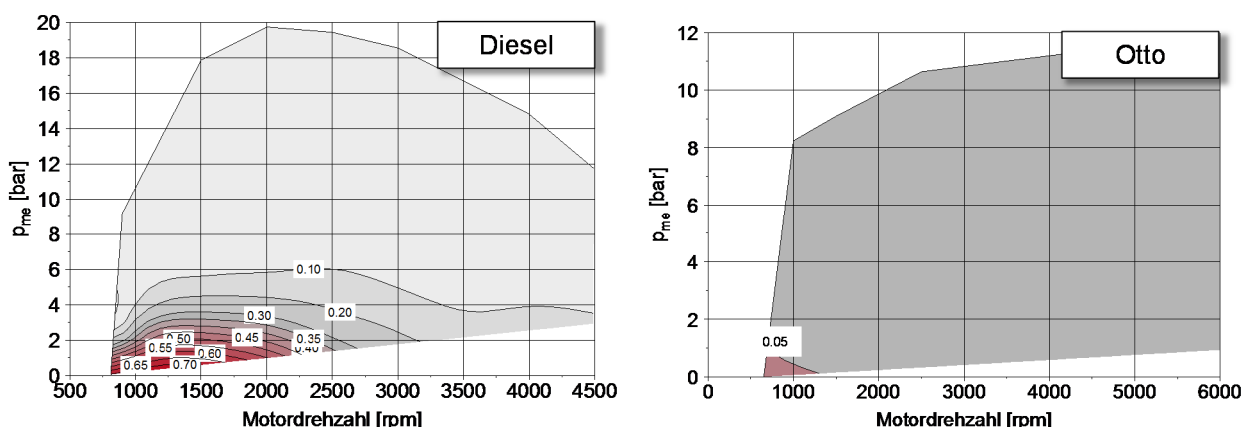


Abbildung 2-4: NO_x Rohemissionskennfeld, Darstellung des NO_2/NO_x Verhältnisses, links: DI-Dieselmotor, rechts: MPFI-Ottomotor

Eine weitere charakteristische Eigenschaft, die für beide Verbrennungsmotortypen gleichermaßen zutrifft, ist der Kennfeldbereich, in dem eine „hohe“ NO_2 Bildung eintritt. Die Bildung von NO_2 ist vornehmlich nur in den unteren Last- und Drehzahlbereichen nachweisbar. Dies ist bereits ein implizierter Hinweis auf eine gegebene Temperatur- bzw. Lastabhängigkeit der NO_x bzw. NO_2 Bildung.

In der vergleichenden Darstellung ist der europäische NEDC dem US-amerikanischen FTP72 in Bezug auf die NO_2 Bildung gegenübergestellt (Abbildung 2-5). Die Analyse des transienten Betriebsverhaltens des Motors bestätigt das Ergebnis der stationären Vermessung. In den Phasen niedriger Lastanforderung ist das NO_2/NO_x Verhältnis hoch und geht in den Phasen hoher Lastanforderung zurück. An dieser Stelle muss zwischen der NO_2 Konzentration und der NO_2 Emission explizit unterschieden werden. In der Betrachtung der Konzentration sind die NO_2 Anteile in beiden dargestellten Zyklen sehr hoch. Der relative NO_2 Anteil der Emissionen ist dagegen wesentlich geringer. Maßgebend hierfür ist der Abgasmassenstrom. In den Phasen hoher Lastanforderung ist der Abgasmassenstrom hoch und der NO_2 Anteil im Abgas gering. Hieraus resultiert, dass bspw. im FTP72 Zyklus der durchschnittliche NO_2 Anteil an der NO_x

NEDC	FTP72
Konzentration	
Ø NO_2 Anteil = 71 %	Ø NO_2 Anteil = 56 %
Emission	
Ø NO_2 Anteil = 56 %	Ø NO_2 Anteil = 31 %

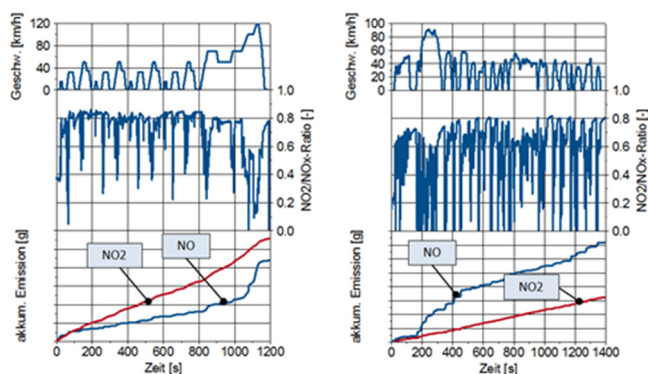


Abbildung 2-5: Auswirkung des Lastprofils auf das NO_2/NO_x Verhältnis (Dieselmotor)

Konzentration über denen des NO liegt aber gleichzeitig der NO₂ Anteil an den Emissionen unter denen des NO liegt.

Diese Ergebnisse zeigen, dass das Lastprofil für den Betrieb eines Dieselmotors ein entscheidender Faktor bei der innermotorischen NO₂ Bildung ist. Darüber hinaus hat die Abgasnachbehandlungsanlage ebenfalls einen großen Anteil an dem NO₂/NO_x Verhältnis und somit letztlich an der NO₂ Emission (siehe Kapitel 2.3).

Auswirkung auf den Menschen

Der Mensch nimmt Stickstoffdioxid NO₂ überwiegend über die Atmung (Inhalation) auf. Nach einer Veröffentlichung des Hessischen Landesamtes für Umwelt und Geologie [29] kann Stickstoffdioxid zu einer Schädigung der Atemwege führen. Die mögliche Schädigung hängt von verschiedenen Faktoren, wie z.B. der Expositionshöhe und -dauer, dem Atemmuster und der Lungenanatomie ab.

- Das eingeatmete NO₂ dringt (aufgrund seiner geringen Wasserlöslichkeit) in die Lunge bis zu den Lungenbläschen, den sogenannten Alveolen vor. Dort kommt es zum Gasaustausch mit dem Blut. Im direkten Kontakt kann NO₂ die Zellen des Alveolengewebes schädigen und Entzündungen auslösen.
- In den Bronchien kann das NO₂ eine Überempfindlichkeitsreaktion verursachen (sog. Hyperreagibilität), die als ein Risikofaktor für die Entwicklung allergischer Atemweg Erkrankungen gilt.

Eine exakte Aussage, welche gesundheitlichen Effekte beim Menschen durch eine Stickstoffdioxidbelastung ausgelöst werden, kann nach der Studie [29] des Hessischen Landesamtes für Umwelt und Geologie nicht abschließend erbracht werden, da z.B. die Empfindlichkeit und Anfälligkeit individuell unterschiedlich ausfällt. Die Abgrenzung von gesundheitlichen Effekten durch die Stickstoffdioxid-Belastung von den negativen Auswirkungen, verursacht durch die übrigen Luftschadstoffe, ist nur schwer möglich. Offen ist auch die Frage, ob es eine untere Belastungsgrenze gibt, unterhalb derer auch bei langfristiger Exposition keine gesundheitlichen Beeinträchtigungen befürchtet werden müssen. Gäbe es solch eine Erkenntnis, würde diese als Basis für die Festlegung eines Immissionsgrenzwertes dienen. Um das gesundheitliche Risiko zu senken, ist in jedem Fall eine Reduktion der NO₂ Belastung der Luft anzustreben [29, 30].

Eine detaillierte Beschreibung möglicher Auswirkungen von NO₂ auf den menschlichen Organismus liefert [23]. In Abhängigkeit der Konzentration von NO₂ pro Kubikmeter Luft werden in der Studie unterschiedlichen Reaktionen beschrieben:

- Reizung der Bindehäute des Auges ab Konzentrationen von 30 bis 40 µg/m³
- Reizung der Atemwege bei Konzentrationen über 100 µg/m³
- Tendenzen für ein verstärktes Auftreten von chronischen Bronchitis mit Lungenemphysem bei längerer Einwirkzeit
- Verminderung der Lungenfunktion mit Atemnot und Lungenödem bei kurzfristiger Exposition mit sehr hohen Konzentrationen (> 4700 µg/m³).

Eine Veröffentlichung des Bayerischen Landesamt für Umweltschutz [31] führt aus, dass bereits geringe NO₂ Konzentrationen in der Luft (Anmerkung: ohne diese zu quantifizieren) zu Kopfschmerzen und Schwindel führen können.

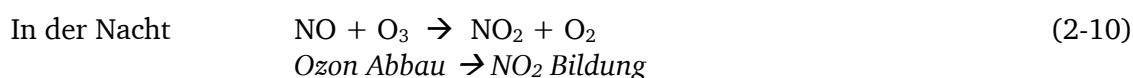
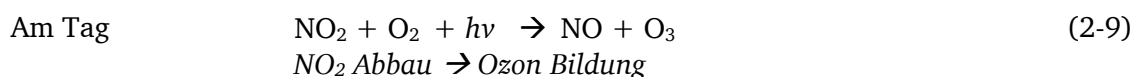
In [30] werden die Ergebnisse von Tierversuchen vorgestellt. Im Rahmen der Tierversuche wurde die Auswirkung unterschiedlicher NO₂ Konzentrationen und Expositionsdauer untersucht. Es wird nachgewiesen, dass eine relativ kurzfristige Einwirkung von NO₂ in Konzentrationen der Größenordnung von 400 bis 600 µg/m³ eine allgemeine Reizung der Atemorgane und eine erhöhte Anfälligkeit der Bronchien gegenüber infektiösen Erkrankungen zur Folge haben. In der Nähe stark befahrener Innenstadtstraßen können kurzzeitig Spitzenwerte bei den Immissionen auftreten, die in dieser Größenord-

nung liegen [31]. Es muss jedoch hinterfragt werden, inwiefern die Ergebnisse aus den Tierversuchen auf den Menschen übertragen werden können.

Der Vollständigkeit halber sei erwähnt, dass NO₂ als Reizgas grundsätzlich alle Gewebe schädigt (Zellschädigung, Funktionsschädigung, Entzündungen), mit denen es in Kontakt kommt. Dies gilt insbesondere auch für den Bereich der Augen, wenn diese hohen NO₂ Konzentrationen ausgesetzt werden. Die in der Luft auftretenden Konzentrationen liegen jedoch deutlich unter diesen Schwellenwerten.

Auswirkung auf Ökosysteme

Stickstoffdioxid NO₂ ist unmittelbar von lufthygienischer Bedeutung. Stickstoffmonoxid NO und andere Stickstoffoxide sind in ihrer Funktion als Vorstufen für die Bildung von NO₂ und Ozon zu sehen [32].



Durch chemische Reaktionen in der Atmosphäre kann NO₂ zur Bildung von Salpetersäure, salpetriger Säure und Nitrat-Salzen beitragen.

Stickstoffdioxid kann zu direkten Schäden an der Vegetation in **Emittentennähe** führen, wenn das Stickstoffdioxid in direkten Kontakt mit Pflanzen kommt. Hierzu zählen laut einer Veröffentlichung von [29]:

- Störungen der Blattorgane von Pflanzen, die zum Beispiel zu einer vorzeitigen Alterung des Blattes oder zu einer Zerstörung des Chlorophylls und damit einhergehender Farbänderung des Blattes führen können.
- Veränderungen an den Pollenoberflächen.

Stickstoffdioxid kann auch bei **emittententfernen** Ökosystemen Schäden verursachen [29, 30]. Hierzu zählen:

- Schäden an Pflanzen, Säurebelastung von Böden und Gewässern sowie Korrosionsschäden an Gesteinsmaterialien verursacht durch sauren Regen, der durch Reaktion der gebildeten Salpetersäure und salpetrigen Säure mit Wasser entsteht.
- Austragung von Nitratsalzen aus der Luft auf Oberflächen von Pflanzen, Böden sowie Gewässern kann zu Veränderungen unterschiedlicher natürlicher Stoffkreisläufe führen. Vermehrte Stickstoffeinträge können das Pflanzenwachstum verändern (etwa durch Überdüngung) oder erhöhen die Anfälligkeit der Vegetation gegenüber Insekten und Pilzen.

2.1.5 Ammoniak NH₃

Ammoniak ist kein klassischer Schadstoff, der als Verbrennungsprodukt gebildet wird. Ammoniak wird als Reagenz für die Stickoxidreduktion bei NH₃-SCR Systemen benötigt und in direkter oder indirekter Form dem Abgas nachträglich zugeführt. Gemäß Richtlinie 2005/78/EG darf die Ammoniakemission für die Typgenehmigung im jeweils vorgeschriebenen Emissionsprüfzyklus einen Mittelwert von 25 ppm nicht überschreiten [33].

Ammoniak ist ein farbloses, stechend riechendes Gas. Die Geruchsschwelle ist sehr niedrig (15 ppm) [34]. Es wird vornehmlich über die Lunge aufgenommen und führt zu verstärktem Tränenfluss und Schleimhautreizung. In hoher Konzentration ab etwa 1700 ppm besteht Lebensgefahr (krampfauslösendes Zellgift). Ammoniak kann auch als Abbauprodukt bei Stoffwechselvorgängen des Körpers ent-

stehen, z. B. beim bakteriellen Abbau von Eiweißen im Darm. In der Leber wird der als wasserlösliches Ion vorliegende Ammoniak zu unschädlichem Harnstoff umgebaut, der dann mit dem Urin ausgeschieden werden kann [35]. Eine für den menschlichen Organismus krankhafte Form von erhöhtem Ammoniakgehalt im Blut ist die Hyperammonämie. Diese wird durch eine Stoffwechselerkrankung meist ein Harnstoffzyklusdefekt hervorgerufen. Hierbei kommt es zu einer Schädigung der Nervenzellen, vor allem im Gehirn.

2.1.6 Partikel PM

Die Bildung der Partikel steht in direktem Zusammenhang mit der NO_x Bildung (vgl. Kapitel 2.2). Daher werden die zwei in der Literatur zu findenden unterschiedlichen Theorien zur Bildung von Partikel im Verbrennungsraum von DI Diesel und DI-Ottomotoren bei Schichtladung vorgestellt.

Verkokungstheorie: Der in den mit Luft gefüllten Brennraum eingespritzte Kraftstoffstrahl zerfällt in Abhängigkeit von Brennraum- und Einspritzdruck, sowie der Brennraumtemperatur in unterschiedlich große Tropfen. Dies führt zu einer inhomogenen Verteilung des Luft-Kraftstoffgemisches im Brennraum. Die erfolgende Verdichtung bewirkt einen Anstieg der Gemischtemperatur. Der Verdampfungsprozess der niedrig siedenden Kraftstoffteilchen setzt ein und es bildet sich um die einzelnen Kraftstofftropfen ein zündfähiges Gemisch. Bei ausreichend hoher Temperatur kommt es zur Selbstentflammung. Die noch flüssigen Kraftstofftropfen verdampfen und diffundieren in die Flammfront hinein. Ist das Sauerstoffangebot hinreichend hoch, kommt es zu einem vollständigen Verbrennen des Kraftstoffes. In der realen Verbrennung kommt es aber zu Inhomogenität in der Gemischbildung. In den unterstöchiometrischen Zonen erfolgen Dehydrierungs- und Crackreaktionen – es bildet sich Ruß [36, 37].

Acetylen-Theorie: Die Kraftstoffmoleküle reagieren im Brennraum zu Ethin (Acetylen, C_2H_2) und zu C_3H_3 Ionen unter Bildung des ersten Benzolrings. Die anschließende Polymerisation von Ringen und die erfolgende Dehydrierung (C_2H_2 -Addition, H-Abstraktion) führt zur Bildung von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK). Hierdurch erhöht sich der prozentuale Anteil an C-Atomen. Anschließend kommt es zur Kondensation und der Ausbildung von Rußkernen (Nukleation). Diese Rußkerne agglomerieren zu Rußprimärteilchen mit der anschließenden Anlagerung weiterer Substanzen. In der nächsten Instanz schließen sich die einzelnen Rußprimärteilchen zu kettenförmigen Rußsekundärpartikeln zusammen [37]. Die Größe der entstehenden Partikel variiert. Gemäß [38] liegt das Maximum der Verteilung bei etwa 100 nm.

2.2 Emissionsminderung durch Abgasrückführung

2.2.1 Interne und externe AGR

Abgasrückführung (AGR) bedeutet, dass die dem Motor zugeführte Luft, neben der Frischluft auch einen gewissen Anteil an Abgas enthält. Hierbei werden prinzipiell zwei Arten unterschieden: die interne AGR und die externe AGR. Bei der internen AGR kommt es durch die entsprechend ausgelegten Steuerzeiten zu einer Ventilüberschneidung, so dass über das noch geöffnete Auslassventil im Ansaugtakt des Motors Abgas in den Brennraum zurückströmen kann. Die treibende Kraft, die hierzu erforderlich ist stellt sich aus dem negative Spüldruckgefälle zwischen Brennraum und Abgasstrang ein. Hingegen bei einem positiven Spüldruckgefälle soll beispielsweise bei Turbo-Ottomotoren durch solch eine Auslegung der Steuerzeiten der Scavengingeffekt genutzt werden. Für eine transiente AGR Rate ist ein verstellbarer Ventiltrieb mit variablen Steuerzeiten für die Ein- und Auslassventile (Nockenwellenphasensteller) erforderlich. Bei der externen AGR wird über ein separates AGR Ventil und eine Rückführungleitung Abgas der Ansaugluft vor dem Einlassventil zugeführt. Die Menge an rückgeführtem Abgas wird über ein separates AGR-Ventil gesteuert.

Mit Hilfe der Abgasrückführung kann die NO_x Bildung während des Verbrennungsprozess im Motor reduziert werden. Der Effekt der Absenkung der Verbrennungstemperaturspitzen hat hierbei einen großen Einfluss. Zwar führt eine Steigerung der AGR Rate zu einem Anstieg der Ansauglufttemperatur, aber gleichzeitig erfolgt eine Senkung des Polytropenexponenten bzw. die Anhebung der spezifischen Wärmekapazität der Ansaugluft. Des Weiteren ist das im Abgas vorhandene CO_2 und H_2O nach dem Ansaugtakt nahezu homogen im Brennraum verteilt. Somit müssen diese inerten Bestandteile beim Verbrennungsprozess mit erwärmt werden. In Konsequenz ergibt sich ein geringerer Temperaturgradient während des Verbrennungsprozesses. Die auf diese Weise verschleppte Verbrennung erreicht nur noch geringe Spitzentemperaturen. Somit lässt sich die Bildung des thermischen NO nachhaltig reduzieren. Ein weiterer Effekt für die gehemmte NO Bildung ist, dass durch die AGR der Sauerstoffpartialdruck verringert wird. Der Grund hierfür ist, dass ein Teil der Verbrennungsluft durch Abgas mit niedrigerem Sauerstoffanteil ersetzt wird [28].

Zusammenfassend gilt: Die AGR trägt zu einer Minderung der Verbrennungstemperatur bei. Es muss jedoch darauf hingewiesen werden, dass grundlegend zwischen den Motorkonzepten (Diesel- und Ottomotor) zu unterscheiden ist und welche Zielsetzung jeweils im Vordergrund steht. Primär dient die AGR dem Dieselmotor dazu, die NO_x Emissionen zu reduzieren. Bei einem DI-Ottomotor mit Euro 6 Applikation kann die AGR zusätzlich dazu genutzt werden, um auf die Volllast-Anfettung zum Bauteilschutz zu verzichten. Damit ergeben sich Vorteile im Kraftstoffverbrauch und somit in der CO_2 Emission. Zudem kann auf das Klopfverhalten bei Volllast im unteren und mittleren Drehzahlbereich Einfluss genommen werden [39, 40].

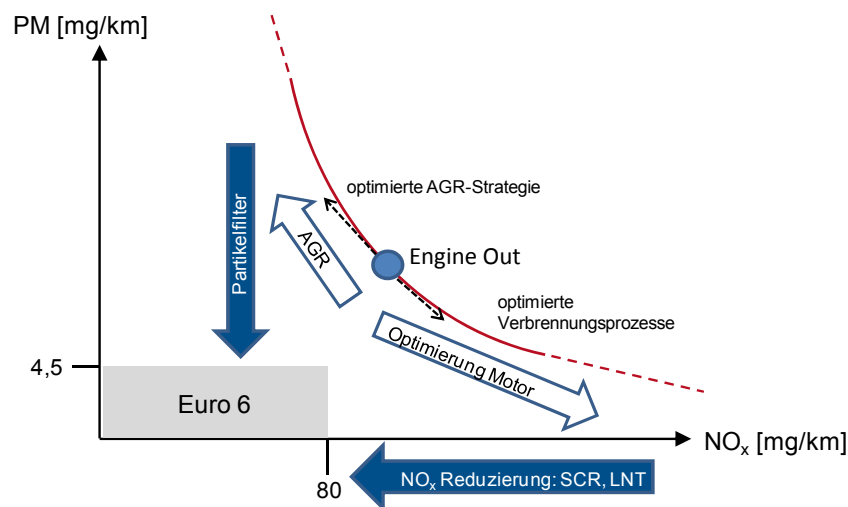


Abbildung 2-6: Trade-Off-Verhalten der NO_x -PM-Emissionen

Die Anwendung der AGR ist geprägt von einem Trade-Off-Verhalten: geringe Stickoxidemissionen bei gleichzeitiger Minimierung der Partikelemissionen (Abbildung 2-6). Der Hauptnachteil der AGR zeigt sich an der erhöhten Rußbildung durch die geringen Verbrennungstemperaturen und das verringerte Kraftstoff-Luftverhältnis. Eine partikelneutrale NO_x Reduzierung ist durch eine zusätzliche Aufladung zur Anhebung des Luftverhältnisses möglich. In [41, 42] wird im Falle von hohen AGR Raten zur neutralen Partikelemission eine Erhöhung des Luftverhältnisses genannt.

Homogene HCCI Brennverfahren stellen sowohl für den Otto- als auch für den Dieselmotor Alternativen dar. Dabei wird ein homogenes Luft-Kraftstoffgemisch im Brennraum durch die Kompression im Verdichtungsstakt gezündet. Der Moment der Selbstzündung ist nicht direkt steuerbar. Dieser hängt von der Gemischzusammensetzung und dem thermischen Ladezustand im Zylinder ab [43]. Die Selbstzündung ist lokal nicht determiniert. Die Initialisierung kann in mehreren Brennraumzonen gleichzeitig erfolgen, entsprechend ist die Brenndauer gering und der Wirkungsgrad kann gesteigert werden. Mit der steigenden Güte der Homogenität werden lokale Zonen mit fetten Gemischen und hohen Verbrennungstemperaturen vermieden. Sowohl die Partikel- als auch die NO_x-Bildung kann dadurch effektiv gemindert werden. Zur Nutzung von HCCI Brennverfahren ist die AGR ein wichtiges Instrument. Der Kraftstoff von Ottomotoren verdampft bereits bei niedrigen Temperaturen, bedarf aber einer hohen Zündtemperatur. Dies ermöglicht eine gute Homogenität. Mittels AGR muss die Temperatur in der Kompression zusätzlich angehoben werden. Der Dieselmotorkraftstoff verhält sich gegensätzlich. Dieser hat schlechtere Verdampfungseigenschaften und zündet bereits bei geringeren Temperaturen. Für eine Saugrohreinjection ist er daher ungeeignet. Um bei DI trotz der späten Einspritzung in der Kompressionsphase eine gute Homogenität sicherzustellen wird durch den Anteil an inertem Restgas der Zündverzögerung vergrößert. Nach [41] kann auf diese Weise eine zeitliche Entkopplung von Einspritzgesetz und Brennverlauf erzielt werden. Generell ist das HCCI Brennverfahren jedoch auf den Teillastbereich beschränkt. Begründet ist dies durch die Abhängigkeit der sich einstellenden Temperatur- und Druckgradienten von der Motorlast.

2.2.2 Hochdruck und Niederdruck AGR

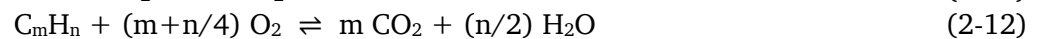
Das Prinzip der externen AGR lässt sich differenzieren in eine Hochdruck-AGR und eine Niederdruck-AGR. Die Hochdruck-AGR beschreibt hierbei den Gaspfad, der die Entnahme des Abgases vor der Turbine und die Rückführung bzw. Beimischung mit der Frischluft nach dem Ladeluftkühler vorsieht. Alternativ hierzu ist die Niederdruck-AGR. Die Entnahme des entspannten Abgases erfolgt hinter der Turbine und dem Abgasnachbehandlungssystem und die Rückführung erfolgt vor dem Verdichter in das Ansaugsystem. Beide Konzepte haben für sich betrachtet Vor- und Nachteile. Da die rückgeführten Abgase der sogenannten heißen bzw. HD-AGR hohe Temperaturen aufweisen (bis zu 400 °C), würde es durch die Zumischung des inertes Abgases zur Frischluft im Saugrohr zu verringerten Luftmassen kommen. Dies hat zur Folge, dass die Füllung abnimmt, der Motor mit geringerem Luftverhältnis betrieben wird und zudem die mittlere Temperatur der Frischladung zunimmt. Aus diesem Grund verfügen aktuelle AGR-Systeme über eine gekühlte AGR-Strecke.

Mit der ND-AGR lassen sich zwei Nachteile der HD-AGR kompensieren. Der Füllgrad wird gesteigert, da das Gemisch aus angesaugter Luft und rückgeführtem partikelfreiem Abgas eine geringere Temperatur hat. Des Weiteren wird der Abgasmassenstrom vor der Turbine des Abgasturboladers nicht reduziert, was eine Beibehaltung der hohen Abgasenthalpie ermöglicht. Die Dynamik und das Ansprechverhalten des Abgasturboladers kann verbessert und der Wirkungsgrad des Gaswechselprozesses kann gesteigert werden. Gleichzeitig ermöglicht die zusätzliche Wegstrecke der Gasführung eine homogene Abgas-Frischluft-Vermischung [44]. Als nachteilig wirkt sich bei der ND-AGR aus, dass der Verdichter durch Kondensat, das aufgrund von Taupunktunterschreitung des Abgases entsteht, stark beschädigt werden kann. Ein kritischer Punkt der AGR-Kühlung, besonders im Non-Road-Sektor, aber auch im On-Road-Sektor in Märkten außerhalb Mitteleuropas ist die Kraftstoffqualität. Die teilweise geringeren Restriktionen auf den Grenzwert für den Schwefelgehalt führen dazu, dass es zur Bildung von schwefliger Säure im Ansaugsystem kommen kann [45]. Für zukünftige Euro 6 Motorkonzepte sind Systeme angedacht, die eine gekühlte ND-AGR-Strecke besitzen und aufgrund von dynamischen und Kaltstart-Aspekten eine ungekühlte HD-AGR-Strecke aufweisen [46].

2.3 Emissionsminderung durch Abgasnachbehandlung

2.3.1 Dieseloxydationskatalysator

Der Dieseloxydationskatalysator (DOC) wurde spätestens mit Inkrafttreten der Euro 2 Abgasnorm im Jahre 1997 von den meisten OEMs in Neufahrzeuge mit Dieselmotor verbaut, wobei die Markteinführung dieser Technologie bereits einige Jahre zuvor erfolgte. Verglichen mit der Euro 1 Abgasnorm wurde der CO Grenzwert um fast 70 % abgesenkt. Ebenfalls wurde der Summengrenzwert für HC und NO_x um annähernd 40 % gemindert. Die primäre Funktionalität eines DOC ist daher die Oxidation von HC zu Kohlendioxid und Wasser und die Oxidation von CO ebenfalls zu Kohlendioxid gemäß den Gleichungen (2-11) und (2-12).



Eine charakteristische Größe zur Beschreibung der Eigenschaft eines Katalysators ist seine Light-Off-Temperatur. Diese beschreibt die Temperatur des 50 % Umsatzpunktes der Schadstoffkonvertierung. Für die Initialisierung der beschriebenen Reaktionen ist eine nach Arrhenius beschriebene Aktivierungsenergie erforderlich. Diese ist für die Oxidationsreaktion des CO geringer als für die HC Oxidation. Dementsprechend verhalten sich die erforderlichen Light-Off-Temperaturen. Der in Abbildung 2-7 dargestellte Verlauf zeigt für den hier verwendeten DOC einen CO Light-Off bei ca. 140 °C und einen HC Light-Off bei ca. 160 °C. In [12] wird eine Temperatur von mindestens 130 °C als notwendig genannt. Wohingegen [17] für CO 155 °C und HC 205 °C als Light-Off-Temperatur angibt.

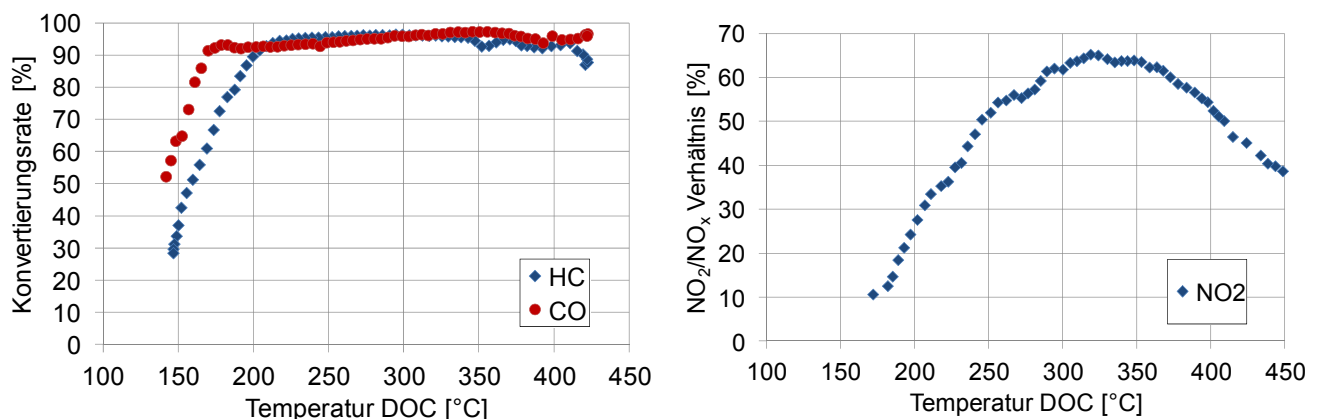


Abbildung 2-7: Charakteristische HC und CO Konvertierungs- und NO₂ Bildungskurve eines DOC

Die sekundäre Funktionalität eines DOC ist die Formierung von NO₂. Das in der Verbrennung gebildete NO wird im DOC gemäß Gleichung (2-13) zu NO₂ oxidiert.



Das so gewonnene NO₂ dient bei nachgeschaltetem Dieselpartikelfilter (DPF) der passiven Regeneration des eingelagerten Rußes und für SCR Systeme zur Bereitstellung des idealen NO/NO₂ Verhältnisses. Der in Abbildung 2-7 (rechts) dargestellte Verlauf der NO₂ Formierung ist charakteristisch. Als Grundlage des Erklärungsmodells dient das thermodynamische Gleichgewicht zwischen NO und NO₂. In dem kinetisch kontrollierten Bereich, dem Temperaturintervall unterhalb der Peaklage von ca. 340 °C, ist die Oxidation von NO kinetisch limitiert. In dem darüberliegenden thermodynamisch kontrollierten Temperaturintervall ist die NO₂ Formierung durch das thermodynamische Gleichgewicht unterdrückt [41, 47]. In Abbildung 2-8 ist hierzu ein Berechnungsansatz zur Bestimmung der theoretisch möglichen NO₂ Formierung dargestellt.

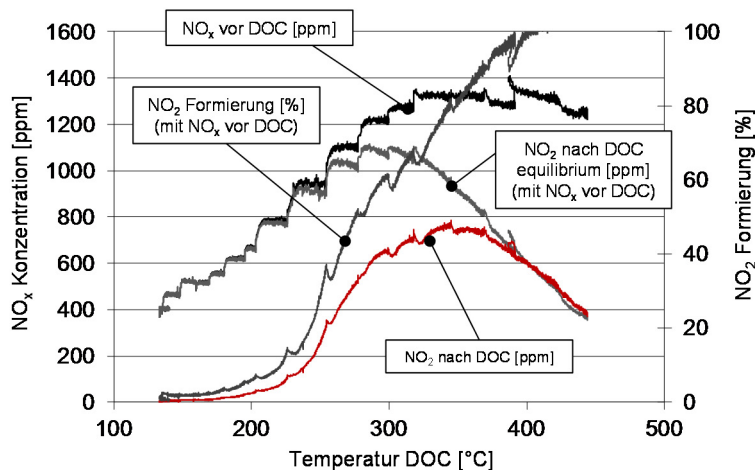


Abbildung 2-8: Berechnungsansatz zur Bestimmung der NO₂ Formierung (nach [53])

$$NO_{2 \text{ theoretisch}} = \frac{k(t) * NO_x * \sqrt{\left(\frac{O_2}{100}\right)}}{1 + k(t) * \sqrt{\left(\frac{O_2}{100}\right)}}$$

mit

$$k(t) = EXP \frac{-(76,296 * (T + 273,15) - 58221)}{8,3145 * (T + 273,15)}$$

Prinzipiell sind die chemischen Eigenschaften der Katalysatoren geprägt von eingesetzten katalytisch aktiven Materialien. Diesbezüglich ist der DOC vergleichbar mit dem Drei-Wege-Katalysator (TWC) des Ottomotors. Beide verfügen über eine katalytische Beschichtung mit Edelmetallkomponenten. Dies ist hauptsächlich Platin (Pt), Palladium (Pd) und Rhodium (Rh). Nach [47] sind die grundlegenden Eigenschaften der Edelmetallbeschichtung in Tabelle 2-2 zusammengefasst.

Tabelle 2-2: Eigenschaften des DOC bei unterschiedlichen Edelmetallbeschichtungen [47]

Edelmetall	Stärken	Schwächen
Pd only	Sehr gutes HC Ansprungsverhalten Hochtemperaturstabilität Gute Drei-Wege-Aktivität	Schwefelempfindlichkeit NO _x Aktivität unter fetten Abgasbedingungen
Pd/Rh, Single Layer	Geringere Schwefelempfindlichkeit Drei-Wege-Aktivität	Eingeschränkte Hochtemperaturstabilität durch Pd/Rh-Wechselwirkungen
Pd/Rh, Double Layer	Hochtemperaturstabil Sehr gutes HC Ansprungsverhalten Sehr gute Drei-Wege-Aktivität Geringere Schwefelempfindlichkeit	
Pt/Pd/Rh, Double Layer	Wie Pd/Rh, DL jedoch mit verbesserter Schwefelresistenz	
Pt/Rh, Double Layer	Sehr gute Schwefelverträglichkeit Sehr gute Drei-Wege-Aktivität Sehr gute NO _x -Aktivität	Geringe Temperaturstabilität Schlechteres HC Ansprungsverhalten im mageren Abgas

Das Verhältnis der Massenanteile von Pt/Pd an der Edelmetallbeschichtung hat einen großen Einfluss auf die Aktivität des DOC. Hiermit lassen sich die unterschiedlichen Light-Off-Temperaturen erklären. Eine Bimetall-Beschichtung mit hohem Pt Anteil begünstigt eine geringe Aktivierungsenergie und somit eine geringe Light-Off-Temperatur. Diese verschiebt sich in Richtung höherer Temperaturen, wenn der Pt Anteil verringert und der Pd Anteil erhöht wird [41, 48]. Wichtig ist, dass stets ein Bimetall vorliegt. Selbst Verhältnisse mit einem wesentlich höheren Pd Anteil als Pt liefern noch geringere Light-Off-Temperaturen als monometallische Beschichtungen. Die HC Konvertierung wird dabei hauptsächlich durch den Pt/Pd Anteil bestimmt und die CO Konvertierung durch den Rh Anteil [49]. Die NO₂ Formierung wird ebenfalls durch einen hohen Anteil an Pt begünstigt. Die höchste NO Oxidationsaktivität lässt sich mit einem hohen Pt/Pd Verhältnis erzielen. Aber im Gegensatz zu dem Light-Off Verhalten kann mit einer monometallischen Pt Beschichtung ebenfalls eine noch hohe NO₂ Formierung ge-

währleistet werden [48]. Eine reine Pd Beschichtung ist in Bezug auf eine NO₂ Formierung zu vernachlässigen. Dafür ist aber ein hoher Anteil an Pd für eine geringere Abhängigkeit der Katalysatorperformance vom jeweiligen Alterungszustand vorteilhaft [48].

2.3.2 Dieselpartikelfilter

Der Dieselpartikelfilter (DPF) wurde als Technologieträger nach dem DOC in das Abgasnachbehandlungssystem der Fahrzeuge mit Dieselmotor eingeführt. Im Jahre 2000 war Peugeot der erste OEM der im PKW-Bereich den DPF serienmäßig im europäischen Markt einführte. Die primäre Aufgabe des DPF ist die Abscheidung und Einspeicherung des sich im Abgas befindlichen Rußes. Prinzipiell wird zwischen offenen und geschlossenen Systemen unterschieden. Offene Systeme sind in der Regel unregelmäßige Systeme mit durchgängigen Kanalstrukturen. Das Abgas wird mit Hilfe von Leitblechen zu den Kanalwänden hingeleitet. Beim Durchströmen lagert sich der Ruß im Innern der metallischen Wabenstruktur ab. Prinzipbedingt kann es hier zu keiner vollständigen Verstopfung in Folge von Ablagerungen kommen. Eine aktive Regeneration ist somit nicht erforderlich. Es erfolgt lediglich eine passive Regeneration. Der damit verbundene Nachteil ist der geringere Filtrationswirkungsgrad. Der Vorteil wiederum ist der geringere Kraftstoffmehrverbrauch. Solche Systeme sind zumeist im PKW-Sektor Nachrüstlösungen für ältere Fahrzeuge ohne DPF ab Werk oder im HD-Sektor für Off-Road Anwendungen. Je nach Konzept variiert der Abscheidegrad zwischen 30-70 % [41] und <50 % [50]. Primär rüsten OEMs ihre PKW-Fahrzeuge mit geschlossenen Filtersystemen aus. Hierbei handelt es sich um sogenannte Wandstromfilter (Wall-Flow) bestehend aus einer monolithischen Struktur. Das Prinzip ist hierbei, dass die Ein- und Auslasskanäle wechselseitig verschlossen sind. Das Abgas wird gezwungen, in Strömungsrichtung über die Kanalwände des DPF hindurch zu strömen. Bedingt durch die geringe Porengröße der Kanalwände kann der Ruß diese nicht passieren und lagert sich stattdessen zunächst in und mit fortschreitender Beladung an ihnen ab. Aktuelle geschlossene DPF besitzen eine massenbezogene Filtrationseffizienz von über 99 % [12, 50]. In Abbildung 2-9 ist das jeweilige Funktionsprinzip für ein geschlossenes und ein offenes System dargestellt.

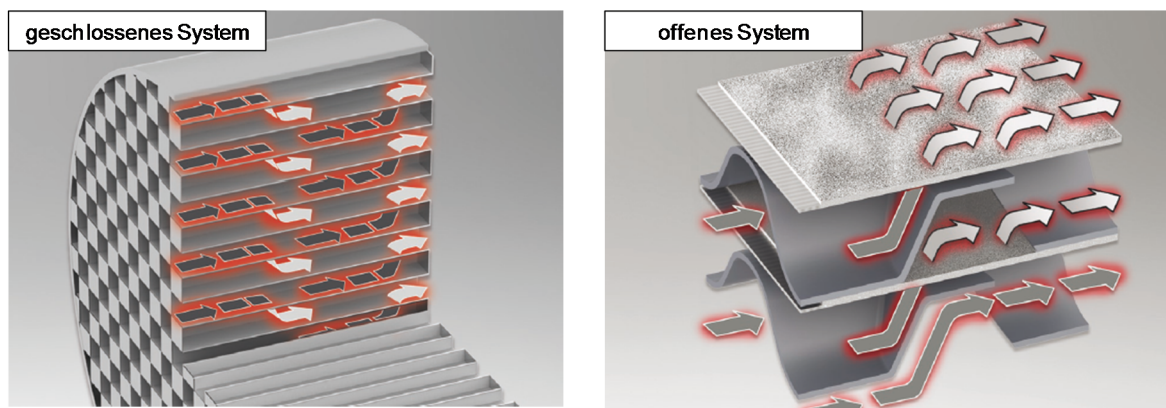


Abbildung 2-9: Funktionsprinzip eines geschlossenen und eines offenen DPFs [51]

In Abbildung 2-10 ist der Temperaturverlauf im DPF während einer Drop-to-Idle Messung dargestellt. Hierbei wird ein mit Ruß vorbeladener Filter in einer Konditionierphase mit stationärem Motorbetriebspunkt und einer HC Nacheinspritzung auf eine Temperatur von ca. 610 °C am DPF Eingang angehoben. Diese Temperatur ist ausreichend hoch, um den Ruß abzubrennen und damit eine aktive Regeneration zu initialisieren. Gleichzeitig wird mit Erreichen dieser Temperatur der Motor abrupt in den Leerlauf gestellt, so dass der stark reduzierte Abgasmassenstrom nur noch einen geringen Teil der Regenerationswärme aus dem DPF austragen kann. Die so unkontrollierte Regeneration führt zu einem starken Temperaturanstieg im DPF. Wobei die höchsten Temperaturen im hinteren Teil um die Mittelachse herum entstehen und in axialer Richtung entgegen der Abgasströmung abnehmen. Genauso in radialer Richtung. Die Ablagerung des Rußes im DPF erfolgt somit vom hinteren Teil hin zum vorderen

Teil des DPFs. Gleiches trifft auch für die Ascheablagerungen im DPF zu, wenn bspw. mineralische Motoröle in den Verbrennungsraum gelangen und mit verbrannt werden [52].

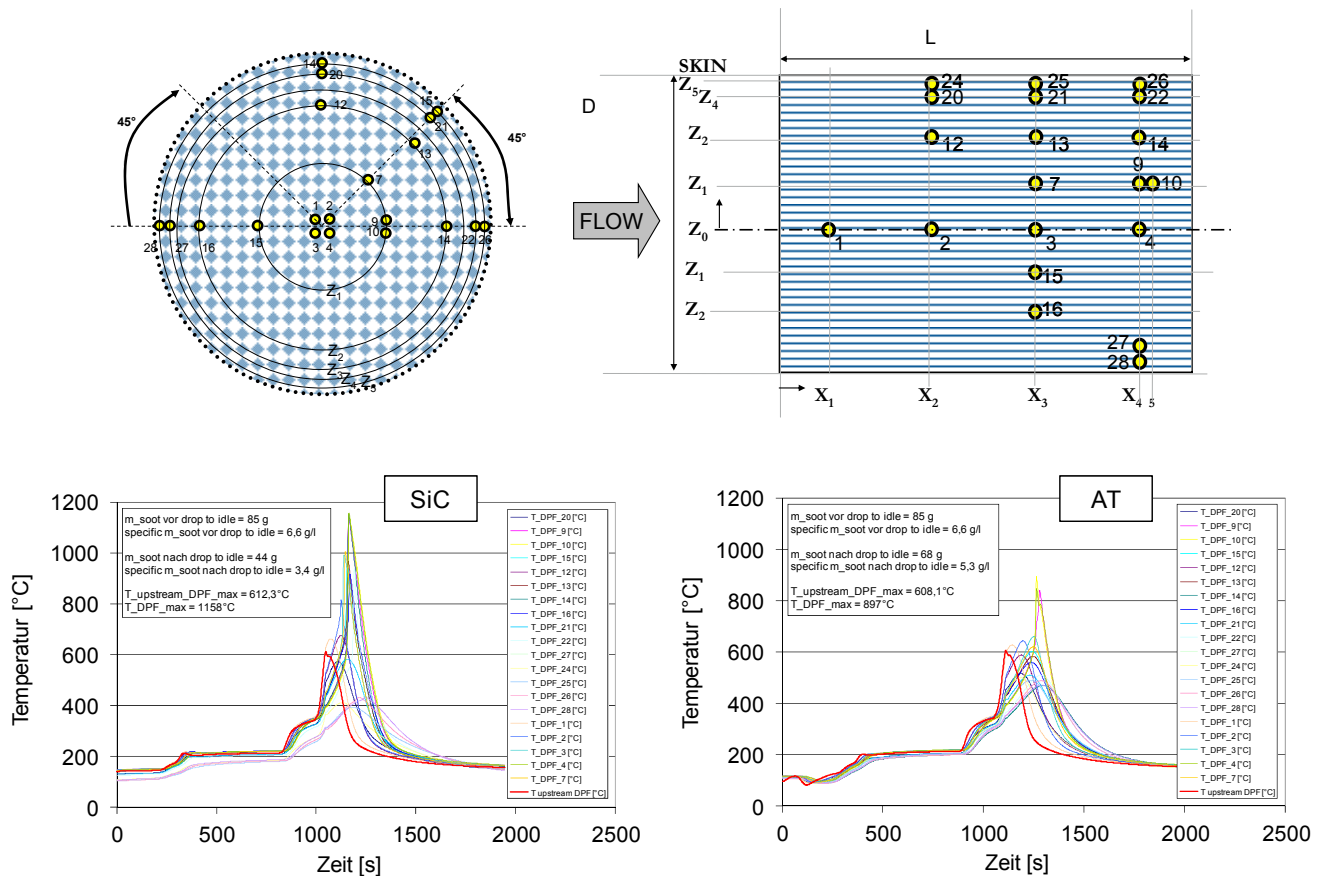


Abbildung 2-10: Temperaturverlauf eines mit Ruß beladenen DPF während eines Drop-to-Idle

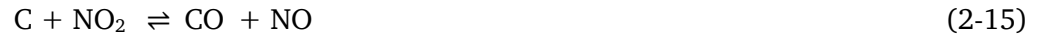
In den Eigenschaften, wie z.B. Temperaturbeständigkeit, Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit unterscheiden sich monolithische Filtermaterialien aus Siliziumkarbid (SiC), Aluminiumtitanat (AT) und Cordierit voneinander. Für die Verwendung als DPF werden häufig Filter aus SiC genutzt. Diese werden als extrudierter Materialstrang gefertigt, der segmentweise zusammengefügt wird, um so dem ungünstigeren Ausdehnungskoeffizienten verglichen mit Cordierit entgegen zu wirken [41, 47].

Für den kontrollierten Abbrand des eingespeicherten Rußes lassen sich prinzipiell zwei Methoden unterscheiden: die passive (kontinuierliche) und die aktive (diskontinuierliche) Regeneration. Diese lassen sich anhand der Abbrandgeschwindigkeit beurteilen [53]. In [53] werden die folgenden Faktoren für die chemische Definition der Abbrandgeschwindigkeit angegeben:

- Chemische Zusammensetzung des Brennstoffs
- Partikelgröße und -form des Brennstoffs
- Oberflächenbeschaffenheit des Brennstoffs
- Additive als zusätzliche Reaktanten
- Prozesstemperatur
- Druck, unter dem der Prozess stattfindet

Passive Regeneration

Der Ruß oxidiert mit dem im Abgas hinter DOC vorhandenen NO_2 . Der so entstehende Effekt wird auch als CRT Effekt (Continuously Regenerating Trap) bezeichnet. In den Gleichungen (2-14)-(2-16) sind die Reaktionen zum Rußabbau aufgeführt.



Prinzipiell lassen sich die drei folgenden Zustände unterscheiden: Bei zu geringen Abgastemperaturen unterhalb von 250°C hat der DOC keine ausreichend hohe Temperatur, um NO_2 bilden zu können (vgl. Abbildung 2-7). Die vorhandene Menge an NO_2 reicht nicht aus, um den Ruß abzubauen – die Rußbelastung nimmt zu. In einem Temperaturbereich von $250\text{--}400^\circ\text{C}$ wird hinreichend viel NO_2 gebildet. Der eingespeicherte Ruß kann abgebaut werden. Es wird ein Gleichgewichtszustand zwischen Einspeicherung und Abbau erreicht. Eine weitere Temperaturerhöhung hat keinen Vorteil in Bezug auf einen verbesserten Rußabbau. Die Ursache hierfür liegt in dem zuvor erläuterten NO/NO_2 Gleichgewicht. Bei hohen Temperaturen reduziert das NO_2 wieder zu NO . In [54] wird für die passive Regeneration bei 370°C eine dreimal höhere Effizienz angegeben als bei 485°C . Durch eine katalytische Beschichtung des cDPF kann dieser ebenfalls NO_2 bilden. Dies ist in Bezug auf ein nachgeschaltetes SCR System anzustreben. Aber auch für den CRT-Effekt hat es Vorteile, da dadurch innerhalb des cDPF während der Regenerationsphase NO_2 nachgebildet werden kann [41]. In Abbildung 2-11 sind Vermessungsergebnisse von unterschiedlichen CRT Kombinationen dargestellt. Hierbei wurde der Testfilter mit einer spezifischen Rußmasse von 4 g/l vorbeladen. Anschließend bei konstantem Motorbetriebspunkt über einen zusammenhängenden Zeitraum von 5 h passiv regeneriert. Der vom Motor in dieser Zeit emittierte Ruß wurde mit einem Vor-DPF vor dem eigentlichen CRT-System aufgenommen, um Quereinflüsse zu vermeiden. Bei einer niedrigen Temperatur von 250°C bleibt der Rußabbrand in allen Kombinationen unter 20% . Eine Abhängigkeit entsprechend der Edelmetallbeschichtung des DOC und des cDPF lässt sich hier jedoch am besten nachweisen. Ist diese hoch, so ist auch der Rußabbrand hoch. Bei einer hohen Temperatur (350°C) ist der Rußabbrand entsprechend dem NO_2 Angebot hoch. Hier liegen die ermittelten Werte bei weit über 90% in allen Kombinationen. Eine Abhängigkeit des Edelmetallanteils ist hier nicht mehr direkt nachzuweisen.

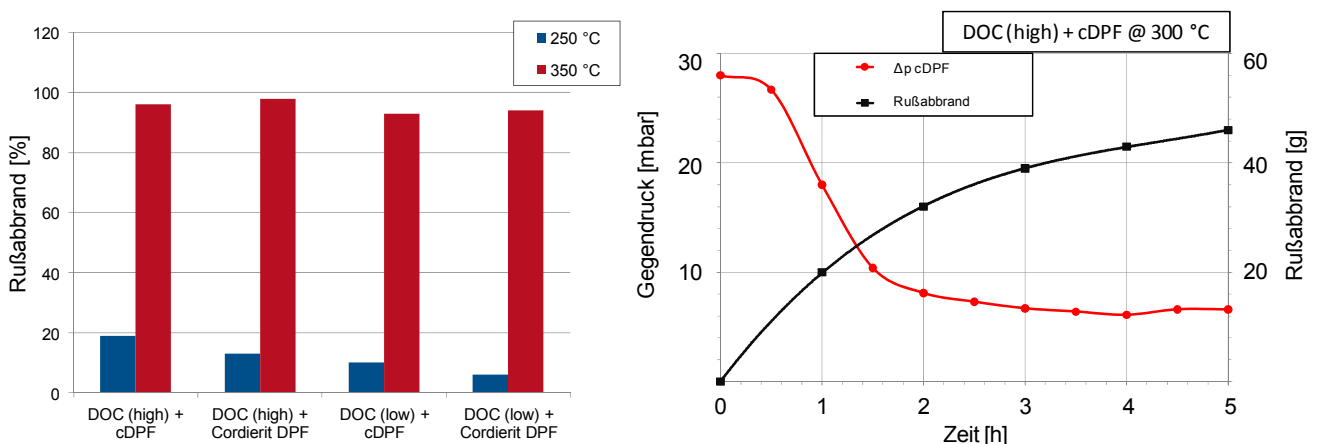


Abbildung 2-11: Rußabbrand während einer passiven Regeneration

In dem rechten Diagramm der Abbildung 2-11 ist über den zeitlichen Verlauf der Rußabbrand und die Abnahme des Gegendrucks dargestellt. Der Rußabbrand wird durch eine stündlich durchgeführte gravimetrische Wägung bestimmt. Innerhalb der ersten beiden Stunden werden annähernd 75% der Rußbelastung abgebrannt und über 90% des durch den Ruß verursachten zusätzlichen Gegendrucks abgebaut. Für beide gilt kein linear proportionaler Zusammenhang.

Die Komponenten der Abgasnachbehandlung unterliegen sehr hohen Beanspruchungen während ihrer Zeit in einem Fahrzeug. Diese haben Auswirkungen auf die Systemperformance und machen eine hohe Dauerhaltbarkeit notwendig. In [41] werden die Alterungsmechanismen beschrieben, die zu einer Deaktivierung von Katalysatoren führen kann. Hierbei wird der Alterungstyp unterschieden in thermisch, chemisch, mechanisch und dem Fouling. Welchen Einfluss die Alterung eines cDPF auf die NO₂ Formierungsperformance hat, ist in Abbildung 2-12 dargestellt. Es wurde ein cDPF am Motorprüfstand in 50 Zyklen jeweils für 5 h auf 700 °C mittels HC Nacheinspritzung aufgeheizt. Nach jeweils 5 Zyklen wurde die NO₂ Formierung in einem Light-Off-Test ermittelt. Mit fortschreitender Alterung lässt diese zunehmend nach. Es kann nachgewiesen werden, dass der Absolutanteil an gebildetem NO₂ abnimmt aber der Temperaturbereich der Bildung unverändert bleibt.

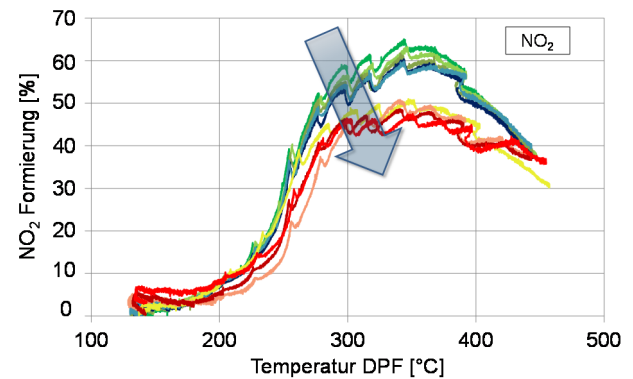


Abbildung 2-12: NO₂ Formierung eines cDPF über der Temperatur bei unterschiedlichen Alterungszuständen [55]

Aktive Regeneration

Die aktive Regeneration von Partikelfiltern erfolgt in einem Temperaturbereich oberhalb derer der passiven Regeneration. Das ideale Temperaturniveau liegt bei 550-650 °C. Zum Erreichen dieser Temperaturen werden unverbrannte HC im Abgas benötigt. Zwei Methoden haben sich hierfür etabliert. Im PKW Bereich wird bei DI-Motoren über eine Nacheinspritzung in den Verbrennungsraum Kraftstoff zugeführt. Dieser nimmt nicht an der Verbrennung teil und wird stattdessen über das Auslassventil mit den Verbrennungsgasen ausgeschoben. Ein Nachteil dieser Methode ist, dass ein geringer Anteil an den Verdichtungs- und Ölabbstreifringen vorbei in den Ölkreislauf gelangt und so das Öl verdünnt. Im HD-Bereich wird mittels zusätzlicher Einspritzdüse im Abgasstrang der Dieselkraftstoff direkt vor den DOC eingespritzt und mit einem Mischelement homogen mit dem Abgas vermischt. Das Kraftstoff-Abgasgemisch reagiert entsprechend der Gleichung (2-12) im DOC nach. Die hierbei ablaufenden chemischen Reaktionen sind stark exotherm und ermöglichen so auch bei geringer Motorlast die erforderlichen hohen Temperaturen. Im Gegensatz zur passiven Regeneration wird der Ruß, gemäß den Gleichungen (2-17) und (2-18), durch Reaktion mit Sauerstoff O₂ abgebrannt.



In [56] wird für die Regeneration eines DPF ein Kraftstoffmehrverbrauch von 1-7 % angegeben.

Aktuelle Entwicklungstrends

Iwasaki et al. [57, 58, 59] beschreiben eine aktuelle Entwicklung bei DPFs. Hierbei werden die Einlasskanäle des DPFs zusätzlich mit einer Membranschicht versehen. Diese bewirkt, dass sich der Ruß nicht mehr in, sondern an den Kanälen einlagern kann. Für die Filtrationseffizienz bedeutet dies von Beginn an hohe Wirkungsgrade im Gegensatz zu den bisherigen Konzepten. Des Weiteren kann mit dieser neuen Beschichtungstechnik der Gegendruck sowohl im stationären als auch im transienten Motorbetrieb abgesenkt werden [57]. Darüber hinaus erlaubt diese Technik, dass eine höhere spezifische Rußmasse eingespeichert werden kann. Die Begründung hierfür ist, dass die Gegendruck-Regenerations-Hysterese weniger ausgeprägt ist, wie bei DPF ohne Membranbeschichtung. Hier steigt der Gegendruck degressiv über der Rußbeladung an und fällt in der Regenerationsphase progressiv mit der Rußabnahme (vgl. Abbildung 2-11). Durch die Membranbeschichtung lässt sich ein linear proportionales Gegendruck-Rußbeladungsverhalten erzielen. Dies ermöglicht die Optimierung von Rußbeladungsmodellen, umso exakter die tatsächliche Rußbeladung im DPF bestimmen zu können. Dies wiederum erlaubt den Sicherheitsbereich zu verkleinern und den DPF mit einer höheren spezifischen

Rußbeladung zu betreiben. [57] nennt hier zusätzliche 2 g/l. Für den Kraftstoffverbrauch hätte dies den Vorteil, dass die Zyklen der aktiven Regeneration größere Abstände haben können. Gleichzeitig können die Ölwechselintervalle aufgrund der geminderten Ölverdünnung ausgeweitet werden.

Mit Inkrafttreten der Euro 6b Abgasnorm gelten für den DI-Ottomotor ebenfalls Grenzwerte für die emittierte Partikelanzahl. In Tabelle 2-3 ist nach [60] ein direkter Vergleich der Eigenschaften eines Gasoline Particulate Filter (GPF) und eines Diesel Particulate Filter (DPF) aufgelistet:

Tabelle 2-3: Vergleichende Übersicht von GPF und DPF im NEDC [60]

	GPF (Ottomotor)	DPF (Dieselmotor)
Randbedingungen während eines NEDC		
PM Abgasanteil	gering 1-10x10 ¹² (#/km) 2-10 (mg/km)	hoch 10-100x10 ¹² (#/km) 10-50 (mg/km)
Abgastemperatur	hoch, max 700 °C	gering, max 400 °C
O₂ Konzentration	gering 0-(20) ¹ %	hoch 10-20 %
Auswirkungen		
Filtrationseffizienz	geringer PM Abgasanteil keine PM Schichtbildung geringe Filtrationseffizienz	hoher PM Abgasanteil PM Schichtbildung hohe Filtrationseffizienz
Gegendruck	hohe Temperaturen & Motordrehzahlen hoher Gegendruck geringer PM Abgasanteil keine PM Schichtbildung geringer Gegendruck	geringe Temperaturen & Motordrehzahlen geringer Gegendruck hoher PM Abgasanteil hohe PM Schichtbildung hoher Gegendruck
Passive Regeneration	hohe Temperatur & geringe O ₂ Konzentration passive Regeneration ¹	niedrige Temperaturen aktive Regeneration ist erforderlich

Ein Kraftstoffmehrverbrauch ist bei Einsatz eines GPF im Testzyklus NEDC nicht nachweisbar [60, 61]. Lediglich in der Volllast ist ein Mehrverbrauch von 2-3 % nachweisbar [61], beziehungsweise ein Leistungsrückgang um 2 % aufgrund des erhöhten Gegendrucks [60]. Der Gegendruck ist bei einer motornahen Anordnung des GPF direkt hinter TWC höher als bei einer Unterbodenanordnung. Ursache ist die in diesem Fall zusätzliche TWC Beschichtung des GPF. Aber ein Vorteil einer motornahen Anordnung wäre die höhere Temperatur von Abgas und Partikelfilter und die somit begünstigte passive Regeneration. Andererseits könnte ein Unterboden GPF ein größeres Volumen bei weniger Washcoatmaterial haben. Aufgrund der resultierenden geringeren Raumgeschwindigkeit können gleiche Filtrationseffizienzen erreicht werden [60].

¹ bei Fuel Cut während der Verzögerungsphase

2.3.3 Drei-Wege-Katalysator

Der Drei-Wege-Katalysator (engl. Three-Way-Catalyst, TWC) ist eine Komponente der Abgasnachbehandlung, die vornehmlich nur beim Ottomotor zum Einsatz kommt. Aus Funktionalitätsgründen muss ein stöchiometrisches Luft-Kraftstoffverhältnis von $\lambda=1$ vorliegen. Der TWC besteht aus einem monolithischen Träger aus Keramik oder Metall. Dieser ist mit einem Washcoat versehen in den katalytisch aktive Edelmetalle, wie Platin (Pt), Palladium (Pd) und Rhodium (Rh) dispergiert sind. Zum Ausgleich von Regelschwankungen im Motorbetrieb um den $\lambda=1$ Betriebspunkt wird eine zusätzliche Komponente (z.B. CeO_2) verwendet. Diese ermöglicht Sauerstoff in den überstöchiometrischen Phasen einzuspeichern und in den understöchiometrischen Phasen wieder abzugeben. In der Literatur wird dies als Oxygen Storage Capacity (OSC) bezeichnet. Somit ist eine Erweiterung des nutzbaren Lambdabereichs möglich [03, 26, 28]. In Abbildung 2-13 sind die erzielbaren Umsatzraten für NO_x , CO und HC dargestellt. Sie liegen nach dem Erreichen der Light-Off-Temperatur von ca. 250 °C bei einem TWC um $\lambda=1$ am höchsten. Der ideale Arbeitsbereich eines TWC liegt in einem Temperaturfenster von 400-700 °C. In Gleichungen (2-19)-(2-23) ist das Wirkprinzip des OSC erläutert.

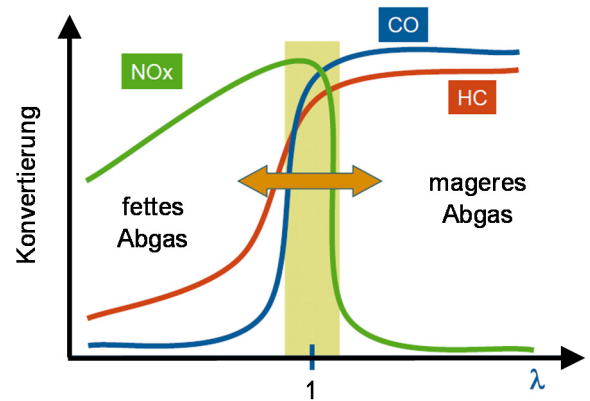


Abbildung 2-13: Umsatzraten in einem TWC (nach [10, 26])

- i. Magerbetrieb, Adsorptionsphase:



- ii. Fettbetrieb, Regenerationsphase:



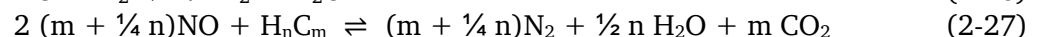
Der eigentliche Arbeitsbereich des TWC ist der stöchiometrische Motorbetrieb. Hier kommt es primär zu den in den Gleichungen aufgeführten Redoxreaktionen der Schadstoffminderung.

- iii. Stöchiometrischer Betrieb, *Oxidationsreaktionen*:



Die weiteren Oxidationsreaktionen sind identisch zu denen des DOC (vgl. Gleichungen (2-11)(2-12).

- iv. Stöchiometrischer Betrieb, *Reduktionsreaktionen*:



- v. Stöchiometrischer Betrieb, *Nebenreaktionen*:



Aktuelle Magerottokonzeppte machen es erforderlich, dass das Abgasnachbehandlungssystem um weitere Komponenten erweitert wird. Im Fokus steht hierbei die Reduktion der Stickoxide.

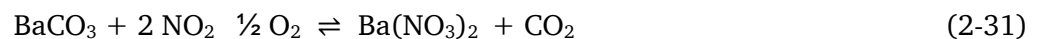
2.3.4 NO_x Speicherkatalysator

Der NO_x Speicherkatalysator (NSK) ist von seinem Grundaufbau vergleichbar mit einem Drei-Wege-Katalysator. Jedoch ist die Funktionalität des NSK um die NO_x Speicherung (Adsorption) erweitert. Hierzu enthält der NSK zusätzliche basische Komponenten [28]. Diese sind auf dem Washcoat aufgebracht und sind der Gruppe der schweren Alkalimetalle (z.B. Kalium, Natrium), der schweren Erdalkalimetalle (z.B. Barium, Calcium) oder der leichten seltenen Erden (z.B. Lanthan, Cer) in Form des Oxids oder Carbonats zugeordnet [62]. Vergleichbar der Betriebsstrategie eines DPF muss auch der NSK in diskontinuierlichen Zyklen regeneriert werden. Hierbei ist eine Betriebsartenumschaltung vom sauerstoffreichen Mager- in den sauerstoffarmen Fettbetrieb erforderlich. Das Funktionsprinzip ist nachfolgend in den Gleichungen (2-30)-(2-33) erläutert [62].

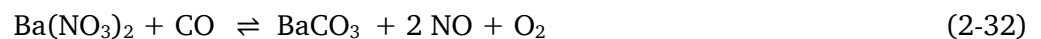
- i. Magerbetrieb, *Bildungsphase*: NO wird mittels Edelmetallkomponenten zu NO₂ oxidiert



- ii. Magerbetrieb, *Adsorptionsphase*: Barium als Speichermaterial liegt im Magerbetrieb als Carbonat vor. In Reaktion mit NO₂ bildet sich das Nitrat und CO₂ wird freigesetzt. Der Nitratbildungsprozess ist der eigentliche Speicherprozess des NO₂. Je nach gewähltem Speichermaterial sind die Nitrats bis zu Temperaturen von 400-600 °C stabil [28].



- iii. Fettbetrieb; *Regenerationsphase*: Das vorhandene CO und HC führt zu dem Zerfall des Bariumnitrates unter Freisetzung von NO und O₂.



- iv. Fettbetrieb, *Reduktionsphase*: Das desorbierte NO wird mit den im Fettbetrieb vorhandenen Reduktionselementen HC, H₂ und CO an der Edelmetallbeschichtung, insbesondere an Rh, zu elementarem N₂ reduziert.



Der Arbeitsbereich eines NSK liegt im Temperaturfenster zwischen 200-400 °C. Hier können NO_x Umsatzraten von über 90 % erreicht werden [28, 62]. Zu hohe Temperaturen wirken sich nachteilig auf das Konvertieverhalten aus. Dies ist zum einen begründet durch die geringer werdende thermodynamische Stabilität der gebildeten Nitrats. Zum anderen durch das thermodynamische Gleichgewicht, das bei Temperaturen größer 500 °C fast vollständig auf der Seite des NO liegt. Stickstoffmonoxid kann prinzipbedingt nicht vom NSK eingespeichert werden [28]. Bei zu geringen Temperaturen wird die erforderliche Aktivierungsenergie zur Oxidation von NO zu NO₂ nicht erreicht.

Der sich einstellende Kraftstoffmehrverbrauch durch den Betriebsartenwechsel von Mager- auf Fettbetrieb wird für den NEDC von [28] mit 2,5 % und von [62] mit 2,3 % angegeben. Des Weiteren hat die Kraftstoffqualität einen großen Einfluss auf die NO_x Konvertierungsperformance, insbesondere in Bezug auf den Schwefelgehalt. Der Schwefel wird durch Oxidation zu SO₃ und bildet mit dem Speichermaterial Sulfate. Die Sulfatbildung stellt hierbei eine Konkurrenzreaktion zur Nitratbildung dar und vermindert so die eigentliche NO₂ Speicherfähigkeit [62]. Die erforderliche Desulfatisierung erfolgt in zyklischen Abständen bei Temperaturen von 650-750 °C [41, 63]. Auswirkungen auf die Dauerhaltbarkeit des NSK sind vor allem durch die Schwefelvergiftung und die thermische Schädigung zu erwarten. Zusätzlich vor dem Hintergrund der in den letzten Jahren überproportional angestiegenen Preise für Edelmetalle und Seltene Erden auf den Weltmärkten [26, 47] ist das Anwendungsgebiet die-

ser Katalysatortechnologie für die NO_x Reduzierung auf Fahrzeuge der mittleren Schwungmassenklasse mit kleinen Dieselmotoren und Mager-Ottomotoren beschränkt.

2.3.5 Selektive-Katalytische-Reduktion

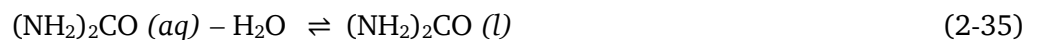
Ein alternatives Instrument zur Stickoxidminderung im sauerstoffreichen Abgas sind Systeme, die nach dem Prinzip der selektiven katalytischen Reduktion (SCR) arbeiten. Auf Grund des Funktionsprinzips sind SCR Systeme auf die Dosierung von Reagenzmitteln in das Abgassystem, aus denen sich NH₃ generieren lässt, angewiesen. Die notwendige Selektivität adressiert die Reaktion zwischen Reagenz und NO_x und nicht die Reaktion mit O₂ im mageren Abgas. Dem gegenüber steht die nicht-selektive katalytische Reduktion, wie HC SCR Systeme. Das Selektivitätsverhältnis β ist hierbei ein Maß für die Effizienz der Umsetzung des eingebrachten Reduktionsmittels:

$$\beta = \frac{NH_{3_zudosiert}}{NO_{x_konvertiert}} \quad (2-34)$$

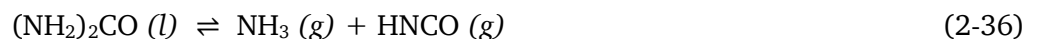
NH₃ Bildung aus AdBlue®

Aktuelle Systeme basieren auf der Verwendung von AdBlue® als Reagenzmedium. Hierbei handelt es sich um eine 32,5 % Lösung von hochreinem Harnstoff in demineralisiertem Wasser (NH₂)₂CO + H₂O, deren Eigenschaften in der DIN 70070 definiert sind. Die NH₃ Bildung aus AdBlue® erfolgt nach der Dosierung in das Abgassystem in drei Schritten:

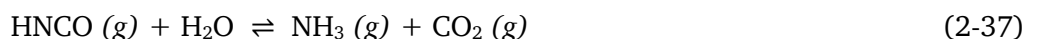
- i. Verdampfung des flüssigen Reagenz:



- ii. Thermolyse zu NH₃ und Isocyanensäure (HNCO)



- iii. Hydrolyse der Isocyanensäure (HNCO) mit Wasser



Die beiden erstgenannten Reaktionen verlaufen endotherm. Daher ist eine Abgastemperatur von mindestens 200 °C erforderlich, damit es in der ersten Phase zu einer vollständigen Verdampfung der harnstoffwässrigen Lösung kommt. Der freigesetzte Harnstoff reagiert in einer Thermolysereaktion zu Ammoniak und Isocyanensäure. Diese reagiert mit dem Wasser der dosierten Emulsion in der Hydrolyse ebenfalls zu Ammoniak und Kohlendioxid. Die Hydrolyse ist eine exotherme Reaktion und erfordert in der Gasphase Temperaturen idealerweise oberhalb von 200 °C; teilweise auch über 300 °C [64]. Zur Senkung der Aktivierungsenergie können Aktivkomponenten (z.B. Al₂O₃, TiO₂) auf dem SCR Katalysator beitragen. Auf einen zusätzlichen Hydrolysekatalysator kann so verzichtet werden.

NO_x Reduktion mittels NH₃

Grundsätzlich erfolgt die NO_x Reduktion nach dem Prinzip der heterogenen Katalyse. Hierzu gibt es zwei unterschiedliche Erklärungsmodelle, welche die Prozesse beschreiben. Dies ist zum einen der Langmuir-Hinshelwood-Mechanismus. Nach diesem erfolgt zunächst eine Adsorption der beiden Edukte NO_x und NH₃ aus der Gasphase auf der Katalysatoroberfläche. Die zweite Theorie basiert auf dem Eley-Rideal-Mechanismus. Hier wird nur NH₃ an einem aktiven Zentrum der Katalysatoroberfläche adsorbiert und reagiert mit dem NO_x Molekül aus der Gasphase. In der Literatur überwiegt die Meinung, dass der Prozess nach dem zweiten Erklärungsmodell am ehesten eintritt [65].

Die nachfolgenden Reaktionsgleichungen beschreiben die bei der selektiven katalytischen Reduktion ablaufenden chemischen Reaktionen zwischen den Stickoxiden und Ammoniak. Welche der Reaktionen abläuft ist primär davon abhängig welches NO₂/NO_x Verhältnis im Abgas vorliegt.

- i. Standard-SCR-Reaktion, der NO Anteil überwiegt:



- ii. Schnelle-SCR-Reaktion, ausgeglichenes NO/NO₂ Verhältnis:



- iii. Langsame-SCR-Reaktion, der NO₂ Anteil überwiegt:



Gemessen an der Reaktionsgeschwindigkeit stellt die Stöchiometrie von 1:1 für NO/NO₂ das ideale Verhältnis dar. [66] gibt für die Schnelle-SCR-Reaktion gegenüber der Standard-SCR-Reaktion einen Faktor von 10 bei der Reaktionsgeschwindigkeit an. Das NO/NO₂ Verhältnis kann nachträglich im Abgas über den DOC oder einen katalytisch beschichteten cDPF durch Oxidationsreaktionen von NO zu NO₂ beeinflusst werden. Ein zu hoher Anteil an NO₂ ist ebenfalls zu vermeiden, da sich die Reaktion zunehmend verlangsamt [67]; gerade bei Verwendung eines Vanadium-basierten SCR Katalysators [68]. Mit Fe- und Cu-Zeolith-basierten SCR Katalysatoren lässt sich die Reaktionsgeschwindigkeit bei hohem NO₂ Anteil im Vergleich zu einem hohen NO Anteil steigern [69]. Generell ist aufgrund der ungünstigen 4:3-Stöchiometrie der Bedarf und somit der Verbrauch an Reagenzien höher.

Die Selektivität von SCR Katalysatoren ist neben den Materialeigenschaften noch von weiteren Randbedingungen abhängig. Unter dem Einfluss der Abgastemperatur, der Abgaszusammensetzung und der angesprochenen Katalysatorbeschichtung kann es zu Nebenreaktionen kommen.

- iv. Bildung von Distickstoffoxid N₂O (Lachgas):



Distickstoffoxid ist ein schädliches Treibhausgas mit einem Faktor von 290 gegenüber CO₂ und begünstigt den Ozonabbau [70].

- v. Oxidation von Ammoniak NH₃:



Die Reaktion von Ammoniak mit dem Sauerstoff im Abgas erfolgt aufgrund der reduzierten Selektivität. Diese setzt bei hohen Temperaturen ab 380 °C ein [64]. Des Weiteren sind diese Reaktionen bei Verwendung eines dem SCR Katalysator nachgeschalteten NH₃ Sperrkatalysators möglich.

SCR Katalysator

Die Monolithe, die die Grundlage für Katalysatoren bilden lassen sich bedingt durch das Herstellungsverfahren in zwei Kategorien unterscheiden. Zum einen gibt es Vollextrudate und zum anderen beschichtete Trägerkatalysatoren. Eine weitere Klassifikation erfolgt durch die katalytische Beschichtung: Vanadium-basiert oder Zeolith-basiert.

Vanadium-basiert (V_2O_5 - WO_3 - TiO_2)

Als Trägeroxid für das katalytisch aktive Divanadiumpentoxid (V_2O_5) dient Titandioxid (TiO_2). Zwischen diese beiden Komponenten wird Wolframtrioxid (WO_3) als thermischer Stabilisator eingebracht. Darüber hinaus hat das WO_3 Einfluss auf die NH_3 Speicherkapazität. Bei Vanadium-basierten SCR Katalysatoren besteht ein Trade-Off in Abhängigkeit der Vanadiumbeladung zwischen der Aktivität bei niedrigen Temperaturen, der Selektivität zu NO_x und der thermischen Stabilität bei hohen Temperaturen [64]. Ist die Vanadiumbeladung zu hoch kommt es unter anderem zu einer erhöhten N_2O Bildung. Aktuelle Entwicklungen fokussieren das Thema der thermischen Stabilität. Bei sehr hohen Abgastemperaturen, wie sie bspw. hinter einem DPF bei aktiver Regeneration auftreten können, neigen Vanadium-Katalysatoren zur Desorption des toxischen Vanadiums. Des Weiteren gibt es Ansätze, die mittels eines Vanadium-SCR-Katalysators die erforderliche Regenerationswärme für einen DPF durch die Oxidation von Kohlenwasserstoffen bereitstellen [64]. Hierfür muss der SCR vor dem DPF positioniert sein.

Zeolith-basiert (Fe- und Cu-Zeolith):

Wegen der Problematik der thermischen Stabilität von Vanadium-SCR-Katalysatoren werden zunehmend Zeolith-SCR-Katalysatoren verwendet. Zeolithe sind kristalline, mikroporöse Alumosilikate. Ihre Struktur beschreibt ein dreidimensionales Kristallgitter bestehend aus (AlO_4) und (SiO_4) Tetraedern. Die Verbindung untereinander erfolgt durch gemeinsame Sauerstoffionen [64, 71]. Selbst bei Temperaturen von 750 °C über mehrere Stunden hinweg behalten sie ihre Aktivität [71]. Ursache einer Deaktivierung von Zeolithen kann eine Dealuminierung, hervorgerufen durch das Aufbrechen der Kristallstruktur [72] oder durch Platzwechselvorgänge und Bildung von Agglomeraten der Metallionen sein [73]. Die größere spezifische Oberfläche im Vergleich zu Vanadium-SCR-Katalysatoren begünstigt die Aktivität bei niedrigen und hohen Temperaturen [47, 74]. Nachteilig ist die geringe Resistenz gegenüber einer Deaktivierung durch Vergiftung, z.B. durch Schwefel oder Additive. Die mikroporöse Struktur der Zeolithe gewährleistet eine hohe Speicherkapazität für NH_3 und unverbrannte Kohlenwasserstoffmoleküle [71]. Die durch HC Einlagerung verursachte Deaktivierung ist bei Zeolith-basierten SCR Katalysatoren ausgeprägter als bei Vanadium-basierten. Zudem ist für eine Entgiftung eine höhere Abgastemperatur erforderlich [71]. In Bezug auf die Bildung von Sekundäremissionen stehen die Zeolith-basierten SCR-Katalysatoren, insbesondere der Cu-Zeolith, in der Kritik bei zu hohen Temperaturen Dioxin und Furan zu emittieren. Laut [75, 76] kann dies aber nicht bestätigt werden.

Tabelle 2-4: Eigenschaftsmatrix verschiedener SCR Katalysatortechnologien (nach [64, 77])

	V_2O_5 - WO_3 - TiO_2	Fe Zeolith	Cu Zeolith
Niedertemperatur-Aktivität (100 % NO)	+	O	++
Niedertemperatur-Aktivität (> 25 % NO_2)	+	++	++
Hochtemperatur-Aktivität (> 400 °C)	+	++	++
Temperaturstabilität (< 600 °C)	++	+	++
Temperaturstabilität (> 650 °C)	--	+	+
Schwefelresistenz (< 500 °C)	++	+	o
geringe N_2O Bildung	++	++	+
geringe HC Speicherkapazität	+	-	++
hohe NH_3 Speicherkapazität	-	+	++
SCR Kosten	++	+	o
Gesamte PGM-Kosten für AGN	++	O	+
++ sehr gut + gut o mittel - schlecht -- sehr schlecht			

Der direkte Vergleich der drei unterschiedlichen Katalysatortechnologien in Bezug auf die DeNO_x Performance zeigt, dass die Temperatur die Haupteinflussgröße ist. Der Cu-Zeolith eignet sich besonders für Niedertemperaturanwendungen. Außerdem hat er die geringste NO₂/NO_x Abhängigkeit, die beim Fe-Zeolith dagegen stark ausgeprägt ist. Zudem besteht die geringste Determiniertheit in Bezug auf den O₂ Gehalt im Abgas (Abbildung 2-14).

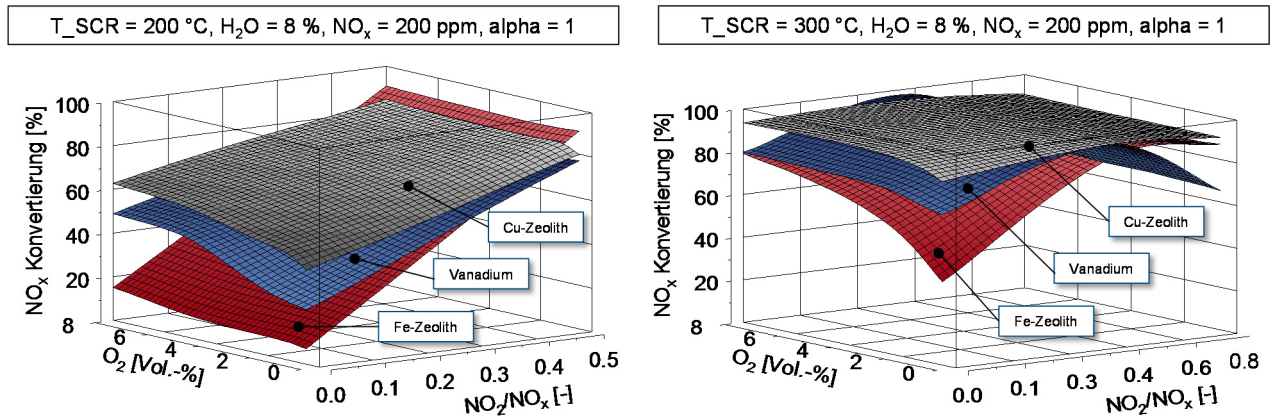


Abbildung 2-14: Einfluss von O₂ und NO₂/NO_x auf die NO_x Konvertierung (nach [78])

Für SCR Katalysatoren zeichnet sich eine weitere Technologie ab, die bislang noch nicht in Serie übernommen wurde. Hierbei handelt es sich um Katalysatoren auf Basis von Misch-Metall-Oxiden, wie z.B. Cu-Mn. Diese verfügen über eine gute Niedertemperaturaktivität. Zudem besitzen sie eine geringe Abhängigkeit vom NO₂/NO_x Verhältnis und haben eine hohe Selektivität bei geringer N₂O Formierung [78, 79].

NO_x Emissionsminderungskonzept: SCR vs. NSK

Aktuelle Veröffentlichungen zeigen einen Trend hin zur SCR Technologie als das dominierende NO_x Emissionsminderungskonzept der Zukunft. Ausschlaggebend hierfür sind vor allem der breite Anwendungsbereich und die im Vergleich zu NSK Systemen geringeren Katalysatorkosten.

Tabelle 2-5: Vor- und Nachteile: SCR vs. NSK (nach [80])

	SCR	NSK
Niedertemperaturaktivität (< 200 °C)	- Erreichen der Light-Off-Temperatur für Katalysatoraktivität und AdBlue® Dosierfreigabe notwendig o bei NH ₃ Vorbelastung	- Sehr gering, Light-Off-Temperatur höher als bei SCR
Hochtemperaturaktivität (> 400 °C)	+ hohe NO _x Konvertierungsraten - hoher Reagenzmittelbedarf	- niedrige NO _x Konvertierungsrate
HC Konvertierung	- HC Einspeicherung steht in Wechselwirkung zur NH ₃ Einspeicherung	+ in Magerphase kann zusätzlich HC konvertiert werden
Systemkosten	+ kein PGM erforderlich - zusätzliches Betriebsmittel erforderlich (AdBlue®)	- PGM und Seltene Erden erforderlich
CO₂ Einsparpotential	o Heat-Up Strategie bei Kaltstart notwendig - Mehrgewicht durch Zusatzkomponenten (AdBlue® Tank, usw.)	- Mehrverbrauch durch NSK Regeneration und Entschwefelung (DeSO _x)
Dauerhaltbarkeit	o geringer Einfluss der thermischen und chemischen Alterung	- Abnahme der DeNO _x Performance durch Alterungseffekt
Sonstige	- zusätzlicher Bauraumbedarf	- Schwefelfreier Kraftstoff erforderlich

Aktive SCR Systeme

Alternativ zu den aktuell in Serienfahrzeugen ausgeführten SCR Systemen mit einer Unterbodenanordnung des SCR Katalysators gibt es einen Entwicklungstrend hin zu motornahen SCR Katalysatoren [81, 82, 83, 84, 85, 86]. Entsprechend den jeweils verfolgten Entwicklungszielen finden sich in der Literatur zu aktuellen Veröffentlichungen unterschiedlich ausgelegte Konzepte. Ein Kernthema ist hierbei die Anordnung und die angestrebte Funktionserweiterung von SCR Katalysatoren. So setzt bspw. Müller [64] einen Vanadium-basierten SCR Katalysator vor DOC und DPF (Abbildung 2-15). Der Vorteil hierbei ist das schnelle Erreichen der erforderlichen Betriebstemperatur des SCR Katalysators für die NO_x Reduzierung nach einem Motorkaltstart. Zudem kann durch eine HC Dosierung die oxidierende Eigenschaft des SCR Katalysators in Form der sich einstellenden Exothermie mit genutzt werden. Auf diese Weise kann unterstützend zum DOC zusätzliche Wärmeenergie für die Regeneration des DPF zur Verfügung gestellt werden.

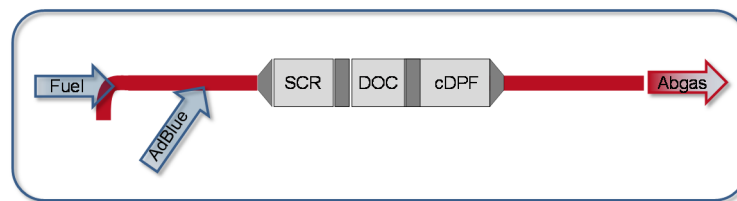


Abbildung 2-15: SCR Katalysator zur Erzeugung der Regenerationswärme für den DPF [nach 64]

Anwendung findet solch ein System bei Dieselmotoren für Industrieanwendungen. Denn zur Vermeidung von unzulässigen Temperaturspitzen durch eingelagertes HC im SCR Katalysator bei instationärer Betriebsweise ist ein stationärer Betrieb vorzuziehen. Zudem bildet sich bei dieser Auslegung aus dem dosierten HC über dem SCR Katalysator zum Teil giftiges CO , das im DOC weiter zu CO_2 oxidiert werden muss. Außerdem stellt sich im parallelen Betrieb von HC und AdBlue® Dosierung ein Rückgang der DeNO_x Performance ein. Eine Übertragung auf alternative SCR Technologien (Cu-Zeolith) erscheint an dieser Stelle nicht zielführend [64].

Eine ähnliche Variante aber mit einem anderen Entwicklungsziel stellt Körfer et al. [87] vor. Die für ein Diesel-Hybrid Konzept ausgelegte Abgasnachbehandlungsanlage verfügt über eine Positionierung des SCR Katalysators vor DOC und DPF. Zusätzlich ist noch ein zweiter DOC in motornaher Position vorgesehen. Die Reagenzdosierung erfolgt vor dem SCR Katalysator und die HC Dosierung vor dem Unterboden DOC (Abbildung 2-16).

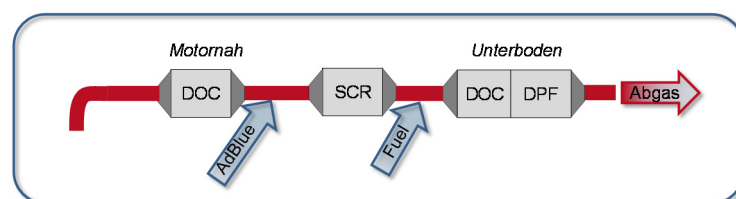


Abbildung 2-16: SCR Konzept für eine Diesel-Hybrid Anwendung [nach 87]

Dieses Konzept ist primär für die Kompensation der ungefeuerten Phasen des Verbrennungsmotors ausgelegt. Der SCR Katalysator soll einerseits nicht zu sehr auskühlen und andererseits schnell auf Betriebstemperatur kommen. Folgende Nachteile sind jedoch hiermit verbunden. Der CRT Effekt kann nicht ausgenutzt werden, da durch die vorige NO_x Reduktion zu wenig NO_2 für die passive Regeneration bereit steht. Daher ist eine aktive Regeneration zwingend erforderlich. Sollte es mittels optimierter Auslegung der Motorapplikation nicht möglich sein, eine entsprechende Absenkung des Partikelrohmissionsniveaus zu erreichen, muss zusätzlich die Frequenz der Regenerationsphasen für den DPF erhöht werden [87]. Auch ist die Auslegung der AGR mit Kompromissen verbunden. Für die Umsetzung einer ND-AGR muss der DPF entsprechend der höheren Partikelemission dimensioniert sein. Jedoch könnten so die NO_x Rohemissionen gesenkt werden. Eine HD-AGR würde diesen Zusammenhang umkehren mit der Konsequenz eines erhöhten Reagenzverbrauchs [87].

Auf dem Gebiet der flüssigen Reagenzdosierung hat Needham [83] ein System vorgestellt, das eine Kombination aus Pumpeneinheit und Injektor ist. Hiermit soll ein variabler Einspritzdruck mit einem Spitzendruck von bis zu 50 bar möglich sein. Diese Dosiersysteme eignen sich besonders für motornahes SCR Systeme. Denn durch den hohen Einspritzdruck soll sich ein feinst zerstäubtes Spray des Reagenz ausbilden. Dies ist besonders bei extrem kurzen Hydrolysestrecken von Vorteil. Alano [88] und Johnson [89] haben diesbezüglich eine Mischstrecke zur Anwendung bei motornahen SCR Systemen vorgestellt. Diese in der Länge 3 Zoll (76 mm) messende Mischgeometrie besteht aus einer Art Spirale. Beim Durchströmen muss das Abgas eine annähernde $\frac{3}{4}$ Kreisbewegung zurücklegen, bevor es auf den SCR Katalysator trifft. Bei Eintritt in die Geometrie wird dem Abgas in radialer Richtung von außen das flüssige Reagenz zudosiert. Diese sogenannte „BlueBox“ (Abbildung 2-17) ist eine Entwicklung der Firmen Faurecia und PSA.

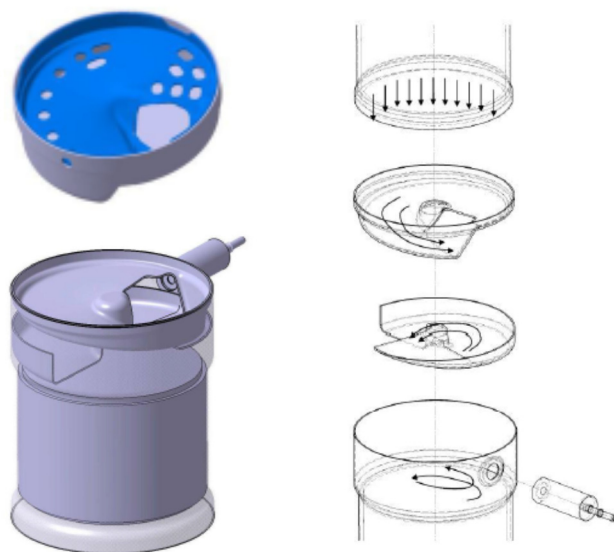


Abbildung 2-17: "BlueBox" System mit motornahem SCR Katalysator [88, 89]

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird eine zur BlueBox ähnliche Geometrie für die flüssige Reagenzdosierung mit einer Eigenentwicklung eines NH_3 Dosiermoduls mit identischen Außenabmessungen und gasförmiger NH_3 Dosierung verglichen. Es erfolgt eine Bewertung in Bezug auf die sich einstellende Gleichverteilung, den Gegendruck und die resultierende DeNO_x Performance.

Als ideale Kombination zu einer BlueBox würde sich ein motornaher SCR-on-DPF (SCRF) Katalysator anbieten. Die Systemintegration von SCR und DPF bietet den Vorteil des schnelleren Erreichens der Light-Off-Temperatur. Um ein vergleichbares Aufheizverhalten durch eine angepasste Heat-Up Strategie mit einem Unterboden SCR Katalysator zu erzielen, gibt Rose [85] einen theoretischen Kraftstoffmehrerverbrauch während der Kaltstartphase von 6-8 % an. Die Aussagen in der Literatur bezüglich des Einfluss des Partikeleintrages auf die DeNO_x Performance sind bislang widersprüchlich. Rose [85] und Lee [90] ziehen aus ihren Untersuchungen den Schluss, dass eine Rußbeladung keinen Einfluss hat. Cavataio [86] hingegen weist einen DeNO_x Performance Rückgang zwischen 300-350 °C bei Rußbeladung nach. Dieser liegt in der Größenordnung von 10 %. Diese Verschlechterung könnte an einer Reaktion zwischen den Rußpartikeln und dem HC mit der SCR Beschichtung liegen. Dieses Phänomen konnte bereits bei anderen Zeolith-basierten SCR Katalysatoren nachgewiesen werden [86] und ist daher kein spezielles Verhalten des SCRF Katalysators. Um eine weitere Effizienzsteigerung zu erzielen werden SCRF Katalysatoren mit SCR Katalysatoren kombiniert. Guo [91] empfiehlt hierbei den SCR vor den SCRF Katalysator zu positionieren. Denn durch die höhere spezifische Washcoatbeladung und die damit höhere spezifische NH_3 Speicherkapazität können für den Kaltstart bessere NO_x Konvertierungsraten erzielt werden. Bezüglich des Gegendruckverhaltens hat Ballinger [92] unterschiedliche SCRF und DPF miteinander verglichen. Im Falle der untersuchten Katalysatoren hat der SCRF auf Cordierit Basis einen geringeren Gegendruck als der auf SiC Basis und als der DPF. Bei einer Rußbeladung ist der Gradient des Gegendruckanstiegs für den SiC SCRF am größten [92]. Während der anschlie-

ßenden Regenerationsuntersuchung wird für alle Katalysatoren eine DeNO_x Performance von 31-34 % bei einer Dosierung mit $\alpha=1$ und einer Initialtemperatur von 650 °C ermittelt [92].

Passive SCR Systeme

Ein Konzept, dass gänzlich auf eine aktive externe Dosierung eines Reagenzmittels verzichtet, stellt das Passiv SCR System dar. Das erforderliche NH₃ für die NO_x Reduzierung wird hierbei direkt on-board gebildet. Eines der bekanntesten passiven SCR-Konzepte ist das "Passive Ammonia SCR System (PASS)" von General Motors. Es ist primär für die Anwendung an einem magerbetriebenen Ottomotor ausgelegt. Hierbei handelt es sich um ein integriertes TWC-SCR-Abgasnachbehandlungssystem. Die spezifischen Leistungsmerkmale eines motor-nahen Dreiwegekatalysators (TWC) und eines Unterboden-SCR-Katalysators machen sowohl die Nachbehandlung von stöchiometrischem als auch von sauerstoffreichem Ottomotorabgas möglich. Großer Vorteil dieses Systems ist der Verzicht auf ein komplexes und teures Reagenzdosiersystem. Vielmehr wird beim PASS-Konzept auf die passive Ammoniakversorgung gesetzt, welche ohne weiteres mit Hilfe des TWC sichergestellt werden kann. In fetten Betriebsphasen des Motors entsteht im TWC natürliches NH₃ welches im weiteren Verlauf des Abgassystems im Unterboden-SCR gespeichert wird und in mageren Betriebsphasen zur NO_x Reduzierung nach dem TWC genutzt werden kann [28, 49; 93, 94].

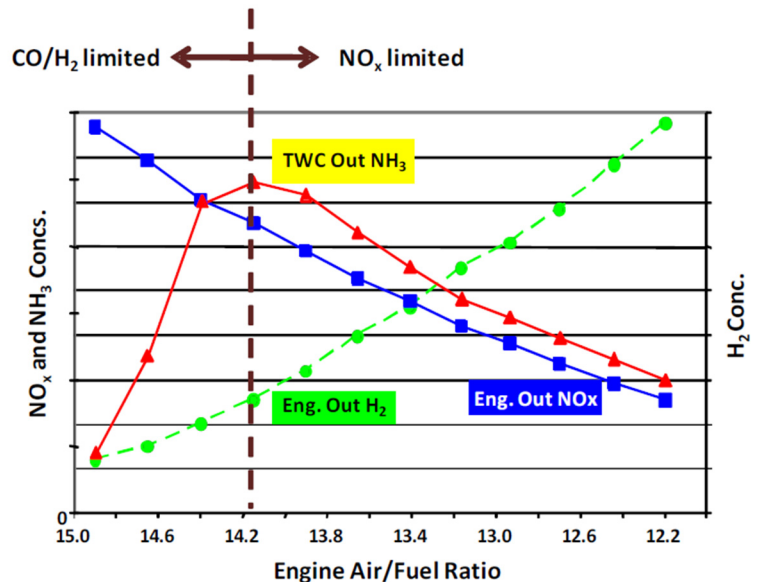


Abbildung 2-18: NH₃ Formierung nach dem PASS Konzept [93]

Die für die Bildung des NH₃ mittels TWC ideale Abgaszusammensetzung aus NO_x und H₂ beschränkt den effektiven Lambdabereich auf ein schmales Intervall (Abbildung 2-18). Außerdem ist die Beschichtung der verwendeten TWC entscheidend. Aufgrund der hohen Kosten für die Edelmetallbeschichtungen werden die TWC Katalysatoren meist getrennt in zwei Bricks ausgeführt. Dies ermöglicht so die charakteristischen Eigenschaften der jeweiligen Beschichtung (Edelmetall und OSC) besser auszunutzen - auch in Hinblick auf die NH₃ Formierung. Reines Palladium (Pd) ohne OSC Beschichtung ist für die NH₃ Bildung am effektivsten. Kommt zu der Palladium noch eine Rhodium (Rh) Beschichtung hinzu sinkt die NH₃ Bildungsperformance ab. Wiederum ist Rhodium in der Abgasnachbehandlung erforderlich, um im stöchiometrischen Betrieb NO zu N₂ zu reduzieren. Ebenso ist der Anteil an der OSC Beschichtung für die NH₃ Bildung ausschlaggebend. Hierbei handelt es sich zu meist um CeO₂. Notwendig ist die OSC Beschichtung für die Oxidation von HC und CO in den Phasen des (unter-)stöchiometrischen Motorbetriebs. Mit Zunahme der OSC Beschichtungsmenge nimmt die NH₃ Formierung ab (Abbildung 2-19) [49, 93]. Zur Begründung: Durch Einsatz des OSC Materials kann die H₂ Konzentration mittels der Wassergas-Shift-Reaktion in den fetten Motorbetriebsphasen angehoben werden.

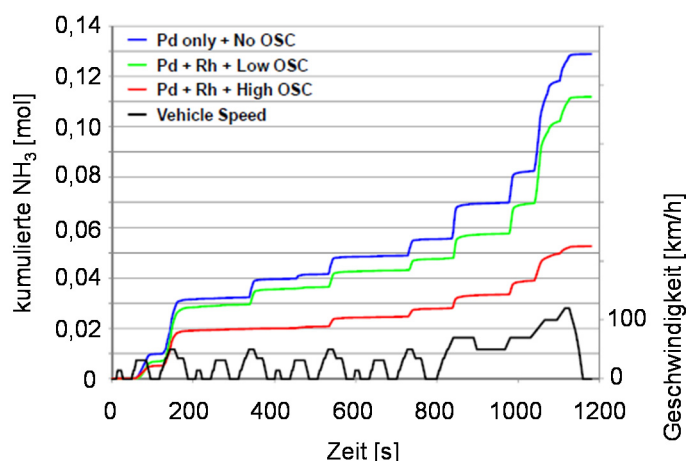


Abbildung 2-19: Effekt des PGM und OSC Anteils auf die NH₃ Bildung im NEDC [nach 93]

Gleichzeitig wird aber das gebildete H_2 wieder durch den zuvor eingespeicherten Sauerstoff abgebaut und steht somit für die NH_3 Bildung nicht mehr zur Verfügung [93]. Weirich [28] weist ebenfalls darauf hin, dass ein hoher OSC Anteil nachteilig für eine NH_3 Bildung im TWC ist. Der dargestellte Zusammenhang liefert die Erklärung warum bei einem NSK System das Thema der in diesem Fall unerwünschten NH_3 Bildung nur von geringer Bedeutung ist, obgleich die Betriebsstrategie eines NSK Systems ebenfalls die Umschaltung zwischen Mager- und Fettbetrieb vorsieht (Abbildung 2-20). Der OSC Anteil der eingesetzten TWC muss relativ hoch sein, um möglichst viel Sauerstoff einspeichern zu können. Dies ist erforderlich, da die Phasen des Fettbetriebs eines NSK Systems in der Regel wesentlich länger sind als bei einem PASS System. Eine typische (nicht allgemeingültige) Umschaltsequenz eines NSK Systems hat 60 s Magerphase (Adsorption) und 3 s Fettphase (Desorption) [62]. Gesteuert wird dies durch die Höhe des auftretenden NO_x Durchbruches hinter NSK. Ein PASS System arbeitet Motorbetriebspunktabhängig. Somit können die Umschaltintervalle und die Phasendauer wesentlich geringer sein. Ebenso gibt es Unterschiede im Zielwert für das Lambda im Fettbetrieb. Das NSK System ist auf Werte weit unterhalb einer effektiven NH_3 Formierung appliziert.

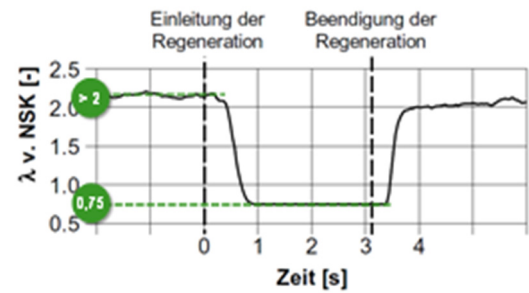


Abbildung 2-20: Lambda-Zeit-Verlauf für eine NSK Betriebsstrategie [nach 62]

3 Umfang und Ziel der Arbeit

Die vorliegende Dissertation basiert auf einer anwenderorientierten Ausrichtung. Sie liefert in ihrem Umfang und ihrem Ziel einen Beitrag zur Stickoxidminderung für Niedrig-Emission-Fahrzeuganwendungen, sowohl am Dieselmotor als auch am magerbetriebenen Ottomotor, mittels des Einsatzes der selektiven katalytischen Reduktion. Der methodische Ansatz, der hierbei verfolgt wird, ist in Abbildung 3-1 schematisch zusammengefasst.

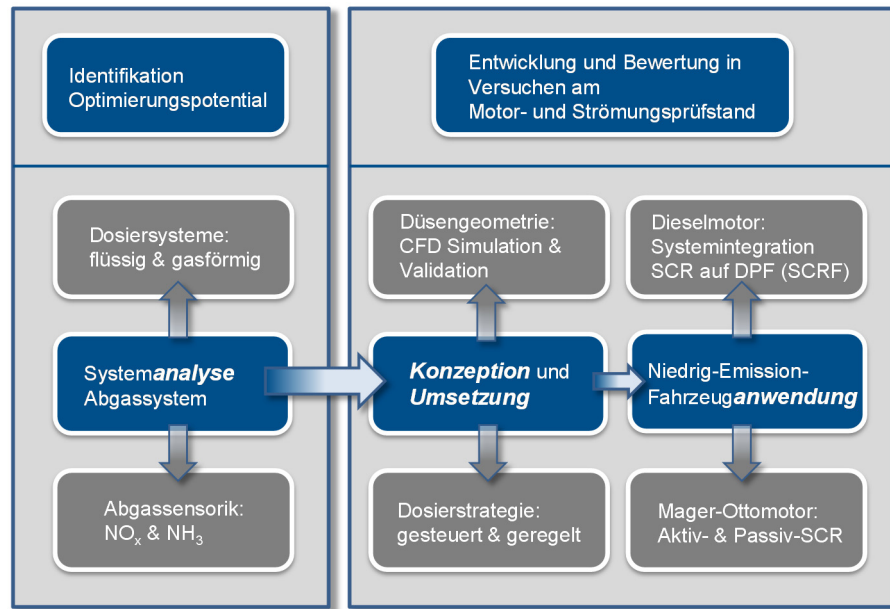


Abbildung 3-1: Struktur der methodischen Vorgehensweise zur vorliegenden Arbeit

Beginnend mit einer Identifikation des Optimierungsbedarfs zur Steigerung der NO_x Konvertierungseffizienz wird das Potential einer gasförmigen NH_3 Dosierung eingehend untersucht. Dies umfasst zunächst eine detaillierte Systemanalyse, um das Verhalten eines gasförmigen NH_3 Dosiersystems als Bestandteil eines Gesamtsystems zur Abgasnachbehandlung von Stickoxiden mittels selektiver katalytischer Reduktion zu charakterisieren und zur Anwendung zu bringen. Aktuell existieren für Serienanwendungen nur Systeme, deren Grundprinzip die Dosierung eines flüssigen Reduktionsmittels, z.B. AdBlue®, ist. In einer Untersuchung wird das Systemverhalten einer flüssigen und gasförmigen Reagenzdosierung gegenübergestellt und das mögliche zusätzliche DeNO_x Potential einer gasförmigen NH_3 Dosierung herausgearbeitet und aufgezeigt. Die Hersteller von solchen Dosiersystemen, unabhängig ob für flüssiges oder gasförmiges Reagenz, bieten in der Regel nur die Versorgungseinheit und die Komponenten zur Mengenregelung an. Als weiterer Aspekt und zusätzliche Abgrenzung zu anderen wissenschaftlichen Arbeiten wird der sich hieraus abgeleitete Bedarf für die Entwicklung von neuen Düsen-/ Mischelementgeometrien zur Einbringung des gasförmigen Ammoniaks in den Abgasstrang aufgegriffen. Des Weiteren wird in der Identifikationsphase die Abgasmesssensorik für NO_x und NH_3 in Hinblick auf ihr Messverhalten und die Möglichkeit der Integration in ein Dosiermodell analysiert. Parallel hierzu erfolgt die Konzeptions- und Umsetzungsphase. Inhalt und Ziel ist es eine neue Methode zu erarbeiten, die es ermöglichen, das gasförmige NH_3 gezielt in der Verteilung und definiert in der Menge in den Abgasstrang einzuleiten. Ein Arbeitspaket stellt somit die Gestaltung und Entwicklung innovativer Düsengeometrien dar. Dies umfasst sowohl Konzepte zur Anwendung bei Unterboden SCR Systemen als auch bei motornahen SCRf Systemen. In der Folge werden diese in Bezug auf ihre charakteristischen Eigenschaften, die sie der Strömung aus Abgas und NH_3 aufprägen, wie z.B. die sich einstellende Gleichverteilung oder das Gegendruckverhalten, in der CFD Simulation optimiert und sowohl am Strömungs- als auch am Motorprüfstand validiert. Im Falle der Dosierung von flüssigen Reagenzmedien wird auf am Markt verfügbare Injektoren zurückgegriffen. Die Dosiersysteme werden jeweils mit selbst entwickelten Dosierstrategien appliziert und betrieben. Hierbei handelt es sich je

nach Messaufgabe und notwendiger Dosierstrategie um eine open-loop α -Steuerung oder um eine closed-loop Regelung. Diese sind sowohl für den stationären als auch für den transienten Motorbetrieb ausgelegt. Als Führungsgrößen werden die Signale der im Abgassystem verbauten Sensoren, wie z.B. für NO_x , NH_3 und Temperatur verwendet. Hierbei liegt der Fokus auf der Einsatzfähigkeit der entwickelten Konzepte bei unterschiedlichen Fahrzeuganwendungen. Im Bereich der Abgasnachbehandlung am Pkw-Dieselmotor werden zukünftige SCR Systeme von dem Gedanken der Systemintegration geprägt sein. Dieser wird in der vorliegenden Dissertation aufgegriffen und in Verbindung mit den Ergebnissen der erfolgten Methodenentwicklung zur Anwendung gebracht. Ziel ist die Ergründung und Nutzung des möglichen Potentials zur NO_x Reduktion eines motornahen Dieselpartikelfilters mit zusätzlicher SCR Beschichtung im direkten Vergleich zu einem Unterboden SCR System, bestehend aus funktionssingulären DPF und SCR Katalysator.

Vor dem Hintergrund der positiven Ergebnisse mit der hier erarbeiteten Methode zur Stickoxidreduzierung am Dieselmotor wird diese auf einen magerbetriebenen Ottomotor angewendet. Der zur Verfügung stehende Prüfstandmotor ist in seiner Grundkalibrierung für den stöchiometrischen Betrieb appliziert. Auf dieser Basis wird eine Rekalibrierung der ECU für den Magerbetrieb in der Teillast vorgenommen und zusätzlich zu den beiden verbauten Standard Drei-Wege-Katalysatoren ein Unterboden SCR System im Abgassystem ergänzt. Das Ziel ist der Nachweis zur Übertragbarkeit der Methodik auf andere Niedrig-Emission-Fahrzeuganwendungen. Ein zusätzlicher neuer Aspekt, der in dieser Arbeit behandelt wird, ist die Besonderheit des Mager-Ottomotor zur diskreten Umschaltung in den unterstöchiometrischen Betrieb, um auf diese Weise NH_3 bedarfsgerecht on-bord zu generieren. Neben der Anwendung eines aktiven SCR Systems mit aktiver NH_3 Dosierung wird daher auch eine Methode zum Betrieb eines passiven SCR Systems mit passiver NH_3 Bildung erarbeitet.

Mit Blick auf den Trend in der Entwicklung bisheriger und zukünftige Emissionsgrenzwerte ist der Bedarf an fortschrittlichen Methoden zur NO_x Reduktion mittels innovativer Abgasnachbehandlungskonzepte unstrittig. Mit dem übergeordneten Ziel einer immer weiteren Kraftstoffeinsparung - unabhängig vom Motorkonzept - gewinnt der Aspekt der Notwendigkeit einer nachhaltigen NO_x Emissionsminderung zunehmend an Relevanz. Dieser Grundgedanke bildet das Fundament der hier vorliegenden Dissertation.

4 Experimenteller Versuchsaufbau

Die experimentellen Messungen wurden alle an Einrichtungen des Instituts für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe der Technischen Universität Darmstadt durchgeführt.

4.1 Motorprüfstand: Dieselmotor und Mager-Ottomotor

Für die Durchführung der Messarbeiten wurde ein transient zu betreibender Motorprüfstand aufgebaut. Die Tatsache, dass im Zuge der geplanten Arbeiten ein Wechsel der Prüflinge (von Diesel- auf Ottomotor) erfolgen sollte, wurde dies bereits in der Planung des Prüfstandskonzeptes berücksichtigt, um Rüstzeiten zu minimieren. Der so entstandene Prüfstand besteht aus dem Verbrennungsmotor, der Belastungseinheit, einer Konditioniereinheit für die Ansaugluft, Komponenten der Abgasnachbehandlung, Abgasanalysatoren, sowie der Mess- und Automatisierungstechnik.

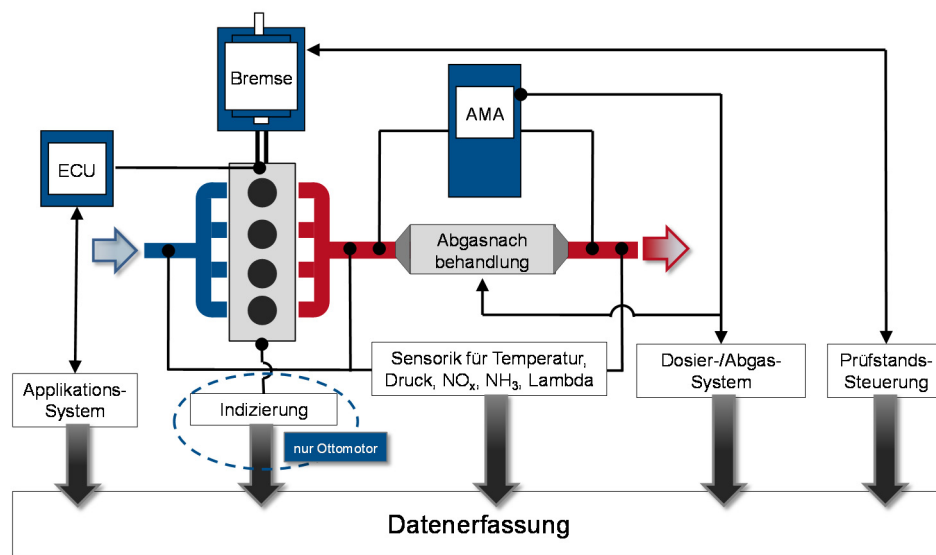


Abbildung 4-1: Schematischer Aufbau des Motorprüfstandes

Die wichtigsten Komponenten des Motorprüfstandes sind:

- Technische Daten der beiden Prüflinge

	Dieselmotor	Ottomotor
Bauart	Vierzylinder-Reihenmotor	Vierzylinder-Reihenmotor
Hubraum	2.199 cm ³	1.339 cm ³
Bohrung x Hub	85 x 96,9 mm	73 x 80 mm
Verdichtungsverhältnis	16,3 : 1	10,5 : 1
Ventilsteuerung	DOHC, 16 Ventile	SOHC, 16 Ventile
Kraftstoffeinspritzung	Common Rail DI	MPFI
Abgasnorm	Euro 5	Euro 5
Max. Leistung	110 kW bei 4.000 min ⁻¹	73 kW bei 6.000 min ⁻¹
Max. Drehmoment	350 Nm bei 2.000-2.500 min ⁻¹	127 Nm bei 4.800 min ⁻¹

- *Wirbelstrombremse* Schenck WT190: max. Bremsdrehmoment 600 Nm, max. Leistung 190 kW, bis n=10.000 min⁻¹ mit Schenck x-act Typ DE Prüfstandsregler
Mit der verwendeten Leistungsbremse ist es nicht möglich, den Motor im Schleppbetrieb zu betreiben. Dies hat Auswirkungen auf die Vorgehensweise bei der Zyklusabstimmung

für den transienten Betrieb. Schubphasen können nicht exakt nachgebildet werden. Zum Ausgleich der fehlenden Trägheitsmasse bspw. gegenüber dem Vergleichsfahrzeug auf dem Rollenprüfstand muss eine Lastpunktverschiebung erfolgen. Ebenso ist der Fuel-Cut Betrieb, bspw. zur Sensorkalibrierung, nicht darstellbar, was aber keinen Nachteil auf die durchgeführten Messungen darstellt.

- *Prüfstandsautomatisierungssystem:* VKM Eigenentwicklung auf Basis von NI LabView
- *Abgasmesstechnik:* AVL AMA i60, 2 Linien für HC, CO, CO₂, NO, NO_x, O₂;
ABB Limas 11 HW für NO, NO₂, NH₃; NO_x Sensoren; NH₃ Sensoren
- *Ansaugluftkonditionierung:* AVL CONSYSAIR ACS 800, max. Luftdurchsatz 800 m³/h, Temperaturbereich 15-30 °C, Luftfeuchtebereich 8-20 g_{H2O}/kg_{tr. Luft}
- *Indizierung:* AVL Indiset Advanced Plus mit Zylinderdruckindizierung
- *Reagenzdosiersystem:* Systeme zur gasförmigen NH₃ Dosierung und zur flüssigen AdBlue® Dosierung.

Auf Grund der großen Vielfalt an unterschiedlichen Messaufgaben kommen nicht alle Systeme gleichzeitig zum Einsatz, sondern immer nur bei Bedarf.

4.2 Strömungsprüfstand

Der Strömungsprüfstand (Abbildung 4-2) dient zu Voruntersuchungen. Die in der CFD Simulation berechneten Ergebnisse, bspw. für Gegendruck und Gleichverteilung, der entwickelten Düsengeometrien und Mischelemente werden hier validiert bevor der Einsatz am Motorprüfstand erfolgt.

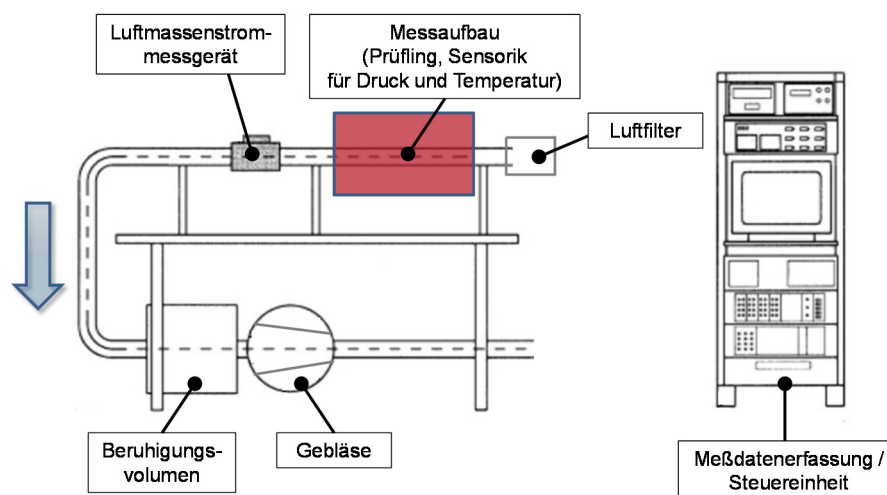


Abbildung 4-2: Schematischer Aufbau des Strömungsprüfstands

Der Prüfstand verfügt über ein Luftgebläse mit dem Luftmassenströme über 400 kg/h eingestellt werden können. Generell ist nur der quasistationäre Betrieb möglich. Um Druckpulsationen zu unterbinden ist ein großes Beruhigungsvolumen integriert. Für die jeweiligen Messaufgaben wird ein individueller Messaufbau vorgesehen. Bei allen durchgeführten Messungen wird mit einem offenen System (Eingang \neq Ausgang) gearbeitet. Aus sicherheitstechnischen Gründen wird für die Durchführung der Messungen auf heißes Motorabgas verzichtet. Als Ersatz wird unkonditionierte Umgebungsluft bei Raumtemperatur verwendet. Für Strömungsvisualisierungen kommt N₂ als Substitut für gasförmiges NH₃ zum Einsatz. Dieses wird in einem Aerosolgenerator zusätzlich mit KCl angereichert. Die zusätzli-

che Masse dieser sehr kleinen Partikel (5-15 nm) wird vernachlässigt. Im Fall der Gleichverteilungsmessung reicht die dosierte Menge an N₂ nicht aus, um die O₂ Konzentration in der angesaugten Umgebungsluft zu verdünnen, damit die sich einstellenden Konzentrationsänderungen zuverlässig mit einem IRD erfasst werden können. Aus diesem Grund wird teilweise direkt NH₃ oder CO₂ als NH₃ Substitut verwendet. Um die Mengendurchflusswerte der Substitute stets auf NH₃ zu korrigieren werden die jeweiligen Gasfaktoren berücksichtigt.

4.3 Angewandte Methoden der NO_x Konzentrationsmessung

Die Erfassung der Stickoxide im Abgas ist ein zentraler Aspekt in der Durchführung der Messreihen. Am Motorprüfstand stehen unterschiedliche Messverfahren zur Verfügung: ein Analysator auf Basis der Chemilumineszenzdetektion (CLD), ein UV-Fotometer (Limas) und NO_x Sensoren. Das Referenzmessgerät für die durchgeführten Messungen ist stets der CLD Analysator.

CLD Messverfahren

Nachfolgend wird die Darstellung zur Chemilumineszenz und deren Funktionsweise aus [95] zusammengefasst. Mit CLD kann die NO₂ Konzentration in Gasen nicht direkt gemessen werden, sondern nur indirekt über die Differenz der NO_x und NO Konzentrationen bestimmt werden [96].

Die Grundlage des Verfahrens beruht auf dem physikalischen Vorgang, dass bestimmte chemische Reaktionen elektromagnetische Strahlung im Bereich des sichtbaren Lichts emittieren. Um das Phänomen als Emissions-Messverfahren anwenden zu können, muss die emittierte Chemilumineszenzstrahlung proportional zu einer Reaktion eines Reaktionspartners, beziehungsweise zu einer an der chemischen Reaktion beteiligte Schadstoffkomponente sein.

Zur Bestimmung der NO Konzentration wird die bei der Oxidation von NO Molekülen mit Ozon auftretende Chemilumineszenz genutzt. Dabei kommt es zu folgenden Reaktionen:



Nach der Teilreaktion (4-1) entsteht zu einem bestimmten Anteil angeregtes NO₂^{*}. Dieses geht unter Abgabe von Licht (elektromagnetischer Strahlung) in den Grundzustand (4-2) über.



mit h^* : Strahlungsenergie bei bestimmter Wellenlänge



Der größte Teil des angeregten NO₂^{*} gibt seine Energie als kinetische Energie an die Moleküle M gemäß Reaktion (4-4) ab. Dabei ist das Verhältnis der strahlenden (4-3) zu strahlungsloser (4-4) Energieabgabe vom Reaktionsdruck und Art der Reaktionspartner abhängig. Je geringer der Reaktionsdruck desto größer ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein angeregtes NO₂^{*} Molekül seine Energie in Form von Licht abgibt.

Das entstehende Licht liegt im Wellenlängenbereich von ca. 600 nm bis 3200 nm, mit einem Strahlungsmaximum bei ca. 1200 nm. Diese Chemilumineszenzstrahlung ist bei O₃ Überschuss proportional zur NO Konzentration. Diese kann über einen Detektor (Photomultiplier) erfasst und in ein spannungsproportionales Messsignal umgewandelt werden. Der optische Filter blendet Licht mit Wellenlängen unterhalb von 600 nm aus.

Für die Reaktion muss Ozon O₃ in ausreichendem Maße zur Verfügung stehen. Das Ozon wird üblicherweise in einem Ozonator, der in den Analysator integriert ist, mittels elektrischer Energie in ausreichenden Mengen erzeugt.

Zur NO_x Bestimmung wird das im Gas enthaltene NO₂ vor Eintritt in den Analysator in einem vorgeschalteten Konverter zu NO reduziert.

UV-Fotometer (Limas)

Das Fotometer arbeitet nach einem optischen Messverfahren. Es werden UV-Strahlen im Bereich von 205-650 nm erfasst. Dieser Wellenbereich ermöglicht die gleichzeitige Erfassung von NO und NO₂ ohne den nachteiligen Einfluss von Querempfindlichkeiten, denn sowohl Wasserdampf als auch CO und CO₂ absorbieren hier nicht [97]. Dagegen haben NO und NO₂ in diesem Wellenbereich eine hohe Absorption. Die Selektivität auf die Messkomponente erfolgt mit Hilfe der Gasfilterkorrelation oder Interferenzfilterkorrelation [98]. Die für die Messung erforderliche UV-Strahlung wird von einer elektrodenlosen Entladungslampe emittiert. Im Strahlengang befinden sich Blendräder mit Interferenzfilter und/oder Gasfilter zur Ausblendung definierter Bereiche. Anschließend separiert ein Strahlenteiler die Strahlung in Mess- und Vergleichssignale. Die in der Messküvette absorbierte Strahlung bewirkt eine Intensitätsänderung des Messsignals. Aus den gebildeten zeitmultiplexen Messsignalen wird mit Hilfe einer Doppelquotientenauswertung die Konzentration der Messkomponente bestimmt [98].

NO_x Sensor

Der Kern des Sensors ist ein keramisches Sensorelement, das nach dem amperometrischen Doppelkammer-Prinzip arbeitet. Das Abgas durchströmt die beiden Kammern des Sensors. Das Messprinzip unterliegt einer Querempfindlichkeit gegenüber dem vorhandenen Sauerstoff bei magerem Abgas. Der Sauerstoff muss also entfernt werden. Das geschieht durch eine elektrische Spannung in der ersten Kammer. Diese ionisiert die vorhandenen O₂ Moleküle, damit sie anschließend den Festkörperelektrolyten aus ZrO₂ passieren können. Das zurückbleibende sauerstofffreie Abgas strömt über eine Diffusionsbarriere weiter in die zweite Kammer. Hier erfolgt die Aufspaltung des NO_x in Stickstoff und Sauerstoff. Der freigesetzte Sauerstoff diffundiert wieder über den Festkörperelektrolyten und der sich hierbei einstellende Strom ist proportional zu der NO_x Konzentration. Eine differenzierte Messung von NO und NO₂ ist nicht möglich.

5 Systembetrachtung und Entwicklungsmethodik zur NO_x Emissionsminderung mittels SCR am Dieselmotor

5.1 Dosiersystem: flüssiges oder gasförmiges Reagenzmedium

Der Betrieb eines SCR Systems setzt immer voraus, dass dem motorischen Abgas ein zusätzliches Reagenzmittel für die NO_x Reduktion aktiv zugeführt oder passiv on-bord generiert wird (Ottomotor, Kapitel 6.3). Für die Bereitstellung und aktive Zuführung des Reagenzes ist ein Dosiersystem erforderlich. Dieses muss entsprechend der Wahl des eingesetzten Mediums ausgeführt sein. Aktuell kommen in der Serie für PKW und LKW Anwendungen größtenteils nur SCR Systeme auf Basis des flüssigen Reagenzes AdBlue® zum Einsatz. In der Ausführung unterscheiden sich diese vordergründig nur in der Vorhaltung und Aufbereitung des Reagenzes. Der Systemdruck für die Einspritzung variiert zwischen 5-10 bar. Bedingt durch die Verfügbarkeit werden Systeme im LKW Bereich zusätzlich mit Druckluft unterstützt. Zum einen, um bei einfacher Injektorgeometrie das Strahlbild und die sich einstellende Verdampfung zu unterstützen und zum anderen, um das Rückspülen der Leitung zur Vermeidung von Ablagerungen zu ermöglichen. Im PKW Bereich wird hierzu mit Abgas rückgespült. Die große Marktdurchdringung der Dosiersysteme, basierend auf dem flüssigen Reagenz AdBlue®, ist primär der Beherrschbarkeit des Systems geschuldet. AdBlue® ist ein ungiftiger Stoff und somit nicht Umwelt- oder Gesundheitsschädlich. Des Weiteren ist eine Bevorratung und Lagerung unproblematisch und der Reagenztank im Fahrzeug ist einfach nachfüllbar. Aber es gibt auch nachteilige Eigenschaften, die eine permanente Systembereitschaft äußerst aufwendig machen. Der relativ hohe Wasseranteil des AdBlue® bewirkt, dass dieses bei -11 °C gefriert. Hier besteht die Gefahr, dass bei ausgeschaltetem System Bauteile durch das sich ausdehnende Medium beschädigt werden. Im Betrieb ist für diesen Fall eine Bauteilheizung vorgesehen. AdBlue® hat zudem die Eigenschaft korrosiv zu wirken. Tritt es bedingt durch seine große Kapillarität aus, kommt es zu einer Austrocknung und Kristallbildung, die ihrerseits zu Verstopfungen oder Beschädigungen führen kann. AdBlue® hat im Vergleich zu Wasser eine 10-100 fach größere Leitfähigkeit [99]. Angesichts dieser nachteiligen physikalisch-chemischen Stoffeigenschaften von AdBlue® wird in dieser Arbeit das Potential eines alternativen Reagenzdosierkonzeptes auf Basis von gasförmigen NH₃ im Detail analysiert und bewertet.

Für die Anwendung eines gasförmigen NH₃ Dosiersystems im Fahrzeug ist es aus sicherheitstechnischen Gründen nicht möglich, dieses direkt aus einer an Bord mitgeführten NH₃ Gasflasche zu versorgen. Es besteht daher die Notwendigkeit, Ammoniak anderweitig zu speichern und mitzuführen. In Tabelle 5-1 ist eine Auswahl an Alternativen aufgeführt, bei denen Ammoniak in direkter oder indirekter Form gebunden in einem Trägermedium vorliegt.

Tabelle 5-1: Auswahl unterschiedlicher Trägermedien für NH₃ (nach [100])

	Molmasse [g/mol]	Dichte [g/cm ³]	Mol NH ₃ pro Mol	Mol NH ₃ pro kg	Mol NH ₃ pro Liter	Volumen- faktor ²	Zerset- zungs- temp. [°C]	NH ₃ Energie- freisetzung [kJ/molNH ₃]
Harnstoff (Urea)								
AdBlue® (NH₂)₂CO+H₂O	N/A	1,086	2	10,8	11,8	1	-	-
Urea, Feststoff (NH₂)₂CO	60,07	1,33	2	33,3	44,3	0,27	140	106
Urea, Granulat (NH₂)₂CO	60,07	0,785	2	33,3	26,1	0,45	140	106

² Bezogen auf AdBlue®

	Molmasse [g/mol]	Dichte [g/cm ³]	Mol NH ₃ pro Mol	Mol NH ₃ pro kg	Mol NH ₃ pro Liter	Volumen- faktor ³	Zerset- zungs- temp. [°C]	NH ₃ Energie- freisetzung [kJ/molNH ₃]
Ammoniaksalz								
Ammoniumcarbamat NH ₂ COONH ₄	78,07	1,6	2	25,6	41	0,29	60	78
Ammoniumcarbonat (NH ₄) ₂ CO ₃	96,09	1,5	2	20,8	31,2	0,38	58	109
Ammoniumhydrogen- carbonat NH ₄ HCO ₃	79,06	1,58	1	12,6	20	0,59	60	190
Metallammin								
Magnesiumamminchlorid Mg(NH ₃) ₆ Cl ₂	197,39	1,16	6	30,4	35,3	0,33	142	87
Calciumamminchlorid Ca(NH ₃) ₈ Cl ₂	247,23	1,09	8	32,4	35,3	0,33	32	69
Strontiumamminchlorid Sr(NH ₃) ₈ Cl ₂	294,77	1,3	8	27,1	35,3	0,33	35	48
Ammoniak								
Ammoniak, flüssig NH ₃	17,03	0,61	1	58,7	35,8	-	-	-

Für die gasförmige Bindung von Ammoniak eignen sich Salze. Diese besitzen die Eigenschaft einer sehr hohen spezifischen NH₃ Speicherkapazität. Solch ein Feststoffspeicher hat im direkten Vergleich mit AdBlue® eine etwa dreimal so große spezifische NH₃ Speicherkapazität (Abbildung 5-1). Der Wert des Feststoffspeichers entspricht in etwa dem des flüssigen Ammoniaks bei 20 °C Umgebungstemperatur und 8 bar Umgebungsdruck. Die Ursache für die geringe NH₃ Speicherkapazität von AdBlue® ist primär der Tatsache geschuldet, dass auf Grund des Phasengleichgewichtes die Lösung aus nur 32,5 % Harnstoff und 67,5 % entmaterialisiertem Wasser besteht. In den Thermo- und Hydrolyse-reaktionen kann der Harnstoff vollständig in NH₃ gewandelt werden, wo hingegen das Trägermedium Wasser größtenteils ungenutzt bleibt.

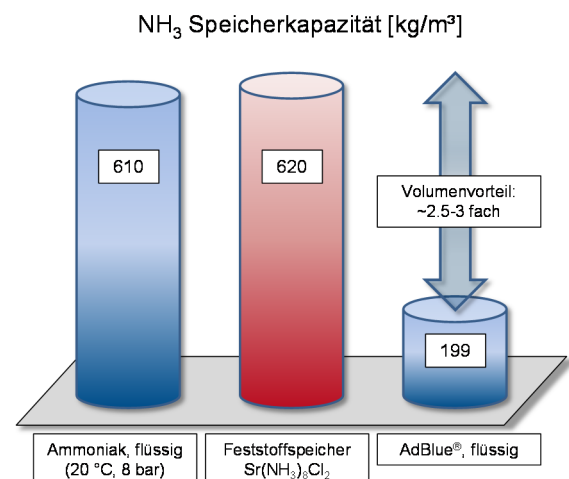


Abbildung 5-1: Vergleich der NH₃ Speicherkapazitäten unterschiedlicher NH₃ Trägermedien (nach [87])

Für die Bewertung eines Systems zur gasförmigen NH₃ Dosierung und die sich daraus ableitenden Unterschiede zu einem System mit flüssiger Reagenzdosierung wird nachfolgend ein industrieller Prototyp eines gasförmigen NH₃ Dosiersystem in seinem Systemverhalten im Detail identifiziert. Das Einbringen des gasförmigen Reagenzes erfolgt mittels selbstkonstruierter Düsen, deren eingehende Untersuchung im Folgenden dargestellt ist. Für die ganzheitliche Applikation eines SCR Dosiersystems wird eine geregelte Dosierstrategie für den transienten Motorbetrieb in Abhängigkeit des verwendeten Reagenzmediums aufgebaut und abgestimmt. Anschließend wird in Bezug auf die DeNO_x Performance die Einbringung eines flüssigen mit einem gasförmigen Reagenz verglichen. Für die umfangreiche Durchführung der Messarbeiten mit gasförmigem NH₃ wurde zudem ein alternatives Dosiersystem für den stationären Einsatz am transienten Motorprüfstand entwickelt und in Betrieb genommen.

³ Bezogen auf AdBlue®

5.1.1 Dosiersysteme für gasförmiges NH₃

Für die Durchführung der Untersuchungen stehen zwei unterschiedliche NH₃ Dosiersysteme zu Verfügung. Hierbei handelt es sich bei einem der beiden Systeme um eine Eigenentwicklung (Dosiersystem #1). Dieses System dient der direkten Bereitstellung von gasförmigen NH₃ aus einer Gasflasche. Zur Anwendung kommt das System am Motorprüfstand für die Analyse der Auswirkungen einer gasförmigen NH₃ Dosierung im Vergleich zu einer flüssigen AdBlue® Dosierung. Das untersuchte NH₃ Dosiersystem #2 ist ein industrielles Prototypensystem und dient der Potentialabschätzung. Hiermit soll eine Identifikation der Systemperformance für solch ein Dosierkonzept durchgeführt werden. Erkenntnisse aus den hier vorgestellten Untersuchungen sind bereits vom Hersteller aufgegriffen worden und in den Entwicklungsprozess der aktuellen Systemkonfiguration mit eingeflossen.

Dosiersystem #1

Das Dosiersystem ist ein am Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe (VKM) der TU Darmstadt entwickeltes Dosiersystem. Das System ist nur für den Vor-Ort-Einsatz an einem Motorprüfstand konzipiert und nicht für den mobilen Einsatz in einem Fahrzeug ausgelegt. Die Ammoniakversorgung erfolgt direkt aus einer Gasflasche. Bei dem verwendeten Gas handelt es sich um Ammoniak 3.8 aus dem Haus der Linde AG. Dieses hat eine Reinheit von 99,98 %. Für die Bilanzierung des Dosiermodells wird stets von reinem NH₃ ausgegangen und der hieraus resultierende Fehler vernachlässigt. Der Vordruck wird auf 3 bar eingestellt und ist damit unter dem Dampfdruck von NH₃ zur Vermeidung von flüssigem NH₃. Obgleich eine Druckreduktion erfolgt kann der Joule-Thomson-Effekt hierbei vernachlässigt werden und im Weiteren auf eine Temperaturkonditionierung des NH₃ verzichtet werden. Der schematische Aufbau des VKM Dosiersystems ist in Abbildung 5-2 dargestellt.

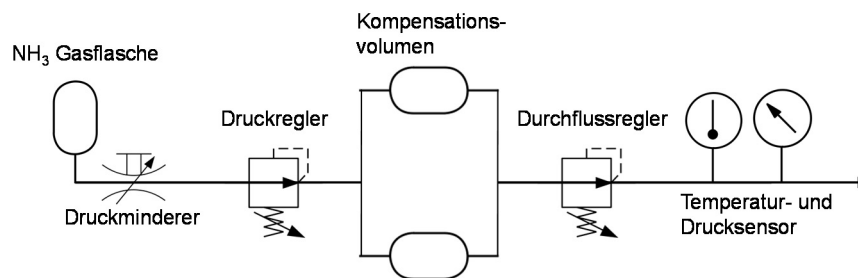


Abbildung 5-2: Funktionsprinzip: VKM Dosiersystem

In Richtung des Gasflusses besteht das Dosiersystem aus einem Druckregler mit einem Regelbereich vom 0-3 bar gefolgt von zwei Kompensationsbehältern. Deren Gesamtvolumen beträgt 2*2 Liter. Dieses Volumen dient der Beruhigung des Gasflusses zwischen den beiden Reglern für Druck und Volumenstrom. Damit wird vermieden, dass es zu einer Interaktion der beiden Regler kommt und das System im Falle eines transienten Dosierbetriebs durch eine Selbstverstärkung in den instabilen Zustand übergeht.

$$m_{\text{NH}_3} = \rho_{\text{NH}_3} * V_{\text{NH}_3} \quad (5-1)$$

Mit der Formel (5-1) und den folgenden Rahmenbedingungen $\rho_{\text{NH}_3} = 1,43 \text{ kg/m}^3$ bei 20 °C, 2 bar ergibt sich eine theoretische Ammoniakmasse von $m_{\text{NH}_3} = 5,72 \text{ g}$, die von dem Kompensationsvolumen aufgenommen werden kann. Diese relativ große Ammoniakmasse gewährleistet einen konstanten Systemdruck (2 bar) - auch in den Phasen der Dosierung. Der Durchflussregler ist hinter dem Kompensationsvolumen installiert. Der Regelbereich liegt zwischen 0 und 5 nl/min bei 1013 mbar, 0 °C. Abbildung 5-3 zeigt eine Gesamtansicht des entwickelten NH₃ Dosiersystems.

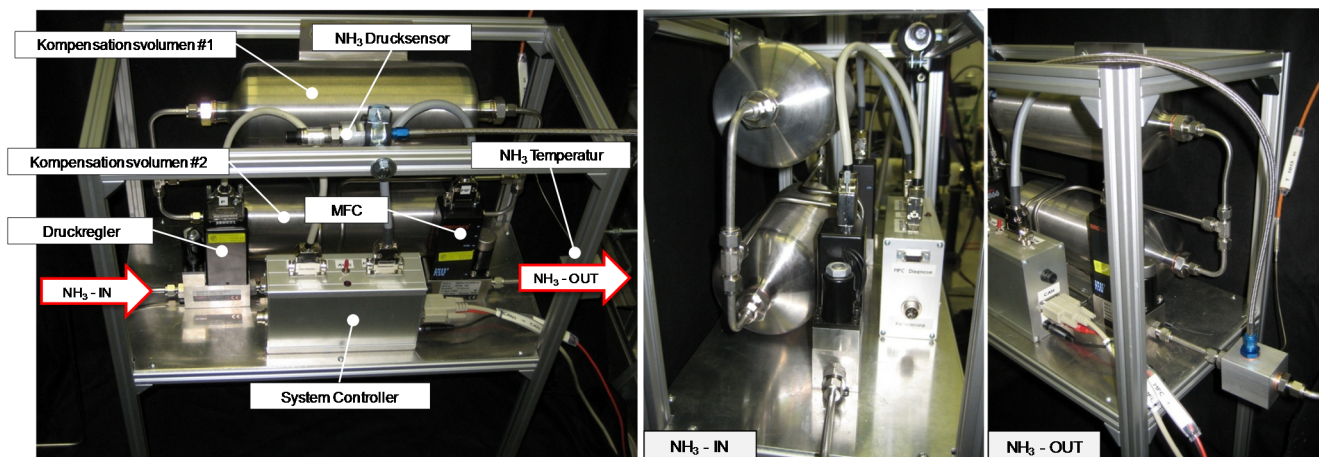


Abbildung 5-3: Dosiersystem #1 zur gasförmigen NH₃ Dosierung

Der System Controller ist ebenfalls eine Eigenentwicklung. Er besteht aus einem CAN-Analog Wandler mit einer eigens hierfür programmierten Firmware. Die Kommunikation zwischen System Controller und der Steuereinheit am Prüfstand basiert auf einem CAN Protokoll. Die Ansteuerung des Druckreglers und des Volumenflussreglers erfolgt ebenfalls über CAN. Des Weiteren werden die analogen Signale der NH₃ Temperatur- und Druckmessung in das CAN Protokoll mit eingebunden. Der System Controller selbst ist mit einer Diagnoseschnittstelle ausgestattet. Diese ermöglicht den Zugriff auf das Setup des Durchflussreglers und eine etwaige Fehlerdiagnose. Für den Betrieb des Durchflussreglers wurden die Regelparameter auf P=0.8, I=5.0 und D=0 gesetzt. Zusätzlich ist eine Schnittstelle zur Kalibrierung vorhanden. Diese dient dem externen Abgleich zwischen Soll- und Istwerten und ermöglicht - falls erforderlich - eine Nachkalibrierung. Für die Bestimmung des tatsächlichen NH₃ Massenstromes sind ein Temperatursensor und ein Drucksensor im Gaspfad integriert. Erst sie ermöglichen die Umrechnung des gemessenen Volumenstromes in einen Massenstrom.

Dosiersystem #2

Das verwendete Ammoniak-Speichermedium bei dem hier untersuchten System ist Strontiumchlorid (SrCl₂), so dass in gebundener Form Strontiumamminchlorid (Sr(NH₃)₈Cl₂) vorliegt. Gespeichert wird das Salz in zwei Kartuschen mit unterschiedlichen Volumina. Dies ist zum einen eine Einheit mit kleinem Volumen mit einer NH₃ Speicherkapazität von 270 g. Sie dient als Start-Up-Einheit direkt nach einem Motorstart. Die zweite Einheit (Main Unit) ist die eigentliche Versorgungseinheit und hat ein größeres Volumen mit einer NH₃ Speicherkapazität von 2000 g. Beide Kartuschen sind mit Strontiumchlorid befüllt. Strontiumchlorid ist ein Salz und zählt zur Stoffgruppe der Chloride. Die Kristalle des Salzes sind farb- und geruchlos. Aufgrund ihrer hygroskopischen Eigenschaft bildet SrCl₂ in Verbindung mit Wasser ein Hexahydrat. Bei Temperaturen oberhalb von 61 °C setzt die Verwitterung des Salzwassers ein – das Wasser wird abgegeben. Gemäß dem Sicherheitsdatenblatt zu Strontiumchlorid-6-Hydrat ist dieses nicht brennbar und in Bezug auf die Lagerung wird es in die Lagerklasse 10-13 eingestuft. Im Sinne der Transportvorschriften ist es kein Gefahrgut und kann in Fahrzeugen mitgeführt werden. Die Herstellung des Salzes SrCl₂ erfolgt in Abhängigkeit des Ausgangstoffes aus einer Verbindung mit Salzsäure gemäß Formel (5-2) und (5-3).



In seiner Funktion als Trägermedium für das bei der selektiven katalytischen Reduktion von NO_x benötigten Ammoniak hat SrCl₂ die Eigenschaft, dass der Mechanismus der chemischen Bindung und die Desorption von NH₃ in Abhängigkeit der Temperatur erfolgt und reversibel ist. Bei einer Temperatur von 20 °C ist das NH₃ vollständig chemisch an das Strontiumchlorid gebunden und es liegt Strontiumamminchlorid (Sr(NH₃)₈Cl₂) vor. Wird die Temperatur durch Zufuhr von Wärmeenergie erhöht, kommt es zur Desorption von NH₃. Bei einer Temperatur um 80 °C sind etwa 85-90 % der Ammoniak

Moleküle desorbiert und liegen gasförmig vor. Zur vollständigen Freisetzung von Ammoniak sind etwa 150 °C erforderlich (Abbildung 5-4).

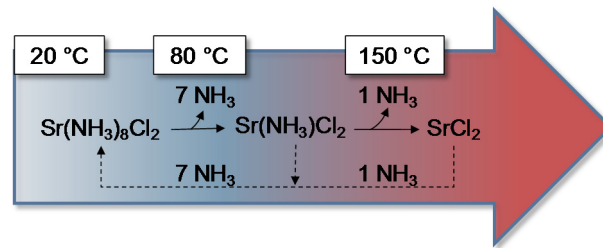


Abbildung 5-4: Reaktionsmechanismus zur Absorption und Desorption von NH₃ an SrCl₂ (nach [101])

Durch die beschriebene Wärmezufuhr erfolgt eine isochore Zustandsänderung, die sich mit der idealen Gasgleichung beschreiben lässt.

$$\text{aus } p \cdot V = m \cdot R \cdot T \quad \text{folgt} \quad \frac{p}{T} = \text{const.} \quad (5-4)$$

Mit steigender Temperatur steigt der Druck innerhalb der Kartuschen im System an. Der jeweilige Druckanstieg ist proportional zur Menge an desorbiertem Ammoniak.

Die Version des verwendeten Dosiersystems ist sehr kompakt. Alle Komponenten sind in einem Hart-schalenkoffer verbaut. Dies ermöglicht den Einsatz sowohl am Motorprüfstand als auch für mobile Anwendungen im Fahrzeug. Ein Überblick aller Komponenten ist in Abbildung 5-5 dargestellt. Die Main Unit und die Start-Up Unit sind über eine Bypass-Leitung miteinander verbunden. Somit kann die Main Unit als Hauptspeicher die Start-Up Unit bei Bedarf nachfüllen. Für die Sicherheit ist im Falle eines unbeabsichtigten Druckanstiegs ein Überdruckventil installiert. Dies ermöglicht eine Zwangsent-lüftung in die Umgebung beim Überschreiten eines Systemdruckes von 7 bar. Weiterhin besteht die Option eine interne Ventilation zu installieren, um im Falle einer Leckage lokale NH₃ Hotspots zu ver-meiden. Darüber hinaus verfügt die Einheit über einen integrierten System Controller, der eine Kom-munikation mittels CAN Schnittstelle ermöglicht. Ein Durchflussregler (MFC) zur Einstellung des NH₃ Massenstromes ist ebenfalls integriert. Außerdem sind mehrere Temperatur- und Drucksensoren, zur Systemüberwachung und gleichzeitig zur Systemsteuerung verbaut. Ein Wiederauffüllen des Systems erfolgt durch den Austausch der gesamten Main Unit. Dies kann durch den Nutzer erfolgen, das Befül-len der Main Unit ist dagegen nur in einer Servicestation möglich. In Tabelle 5-2 sind die wichtigsten technischen Daten des Dosiersystems zusammengefasst.

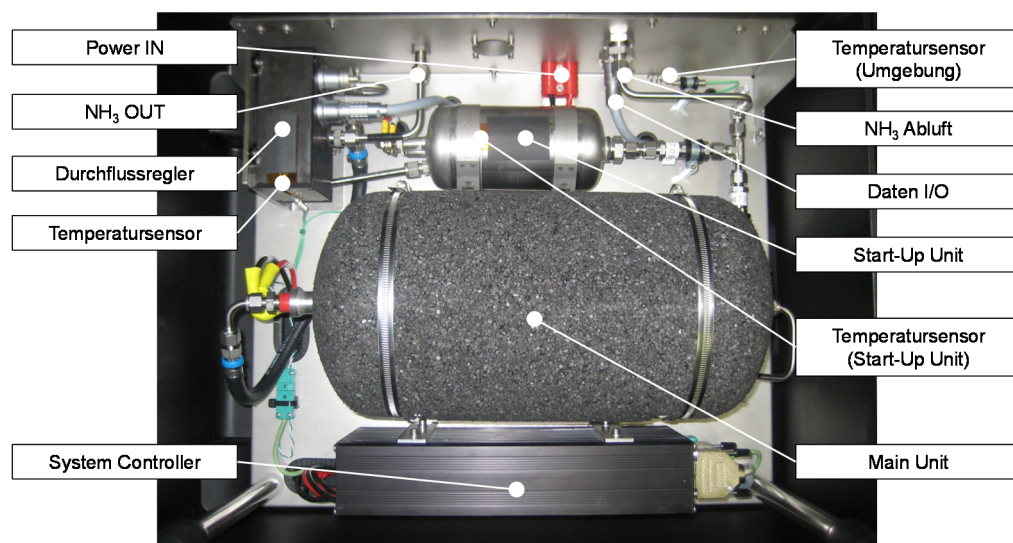


Abbildung 5-5: Dosiersystem #2 zur gasförmigen NH₃ Dosierung

Tabelle 5-2: Technische Daten: Dosiersystem

Technische Daten: Dosiersystem	
NH₃ Speicherkapazität	Main Unit 2.000 g Start-Up Unit 270 g
min. NH₃ Dosiermenge	0,018 g/min
max. NH₃ Dosiermenge	2,313 g/min
Steuersignal	0 – 5 V DC (Δ 0 – 2,3 g/min)
Stromversorgung	12 V DC, 30 A Sicherung

Bei der zur Verfügung stehenden und verwendeten Systemkonfiguration werden beide Units elektrisch beheizt. Die Heizelemente sind in dieser Version jeweils in der Mitte der Kartusche verbaut. Die zentrale Wärmequelle bewirkt eine radiale Wärmestrahlung in Richtung der Kartuschenwand, so dass zunächst das Ammoniak von der Mitte heraus desorbiert und ausgetragen wird. Aktuelle Konzepte des Herstellers sehen auch andere Einbaupositionen der Heizelemente vor mit entsprechend angepassten Heizstrategien. Auf eine Einbindung des am Prüfstand eingesetzten Systems in die Zirkulation der Motorkühlung wird verzichtet. Für Fahrzeuganwendungen würde diese Option jedoch bestehen.

Funktionsbeschreibung des Systems

Die beiden Units haben unterschiedliche funktionelle Aufgaben. Die Start-Up Unit ermöglicht eine schnelle Betriebsbereitschaft nach dem Motorstart aufgrund ihrer kompakten Abmessungen und dem somit relativ kleinen Volumen. Die Temperatur innerhalb der Start-Up Unit kann schnell gesteigert werden und das NH₃ entsprechend schnell vom Strontiumchlorid desorbieren. Die Main Unit dient der Versorgung mit NH₃ nach der Startphase also während der eigentlichen Motorbetriebsphase.

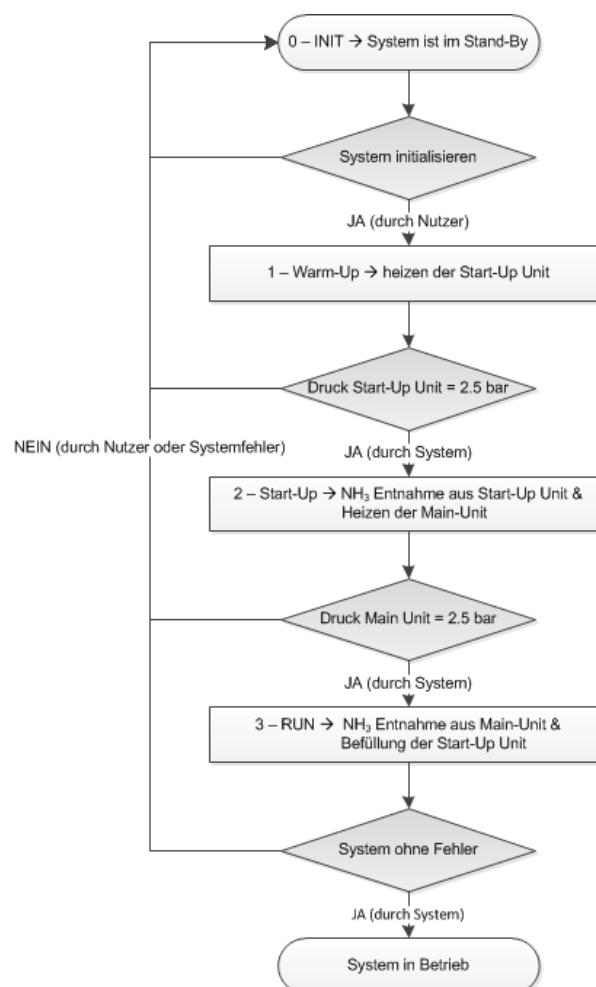


Abbildung 5-6: Flussdiagramm der Systemzustände des Dosiersystems

Die folgenden Betriebszustände lassen sich unterscheiden (Abbildung 5-6):

Der *init* Status ist der Stand-By Zustand. Alle Komponenten sind inaktiv. Nach Einschalten eines Initialisierungssignals durch den Nutzer (Spannung > 3 V) wechselt das System in den *warm-up* Status. Es beginnt das Heizen der Start-Up Unit. Nachdem ein Innendruck von 2,5 bar in der Start-Up Unit erreicht ist, geht das System in den *start-up* Modus über. Das System ist in der ersten Stufe betriebsbereit. Die NH₃ Entnahme erfolgt aus der Start-Up Unit. Parallel hierzu wird die Main Unit aufgeheizt. Erreicht diese einen Innendruck von 2,5 bar wechselt das System in den *run* Modus. Für die Dosierung wird das NH₃ der Main Unit entnommen und die Start-Up Unit wiederaufgefüllt.

5.1.1.1 Systemverhalten bei Füllstandsminderung der Start-Up Unit

Aus dem Funktionsprinzip des untersuchten NH₃ Dosiersystems leitet sich ein Betriebsszenario ab, das als kritisch einzuordnen ist. Hierbei wird die Start-Up Unit aufgeheizt, so dass NH₃ für die Dosierung zur Verfügung steht und eine Entnahme erfolgt. Aber noch bevor die Main Unit ihre Betriebsbereitschaft erreicht, wird das System wieder ausgeschaltet. Auf diese Weise wird der NH₃ Füllstand der Start-Up Unit verringert, ohne dass ein Nachfüllen über die Main Unit erfolgen kann. Dies entspricht dem Betriebsszenario von ausschließlichen Kurzstreckenfahrten im städtischen Umfeld.

Für die Simulation dieses Betriebsszenarios wird am Prüfstand eine Messreihe mit fünf Testläufen durchgeführt. Die jeweiligen Tests werden mit einem Zündungssignal gestartet und mit Erreichen des *RUN* Status gestoppt. Auf diese Weise wird verhindert, dass es zu einer Befüllung der Start-Up Unit kommt. Für die Entnahme aus der Start-Up Unit wird die Dosiervorgabe auf den maximalen Wert von 2,3 g/min gesetzt. Der Absolutwert der NH₃ Füllung zu Beginn der Messreihe kann nicht angegeben werden - es besteht auch keine Notwendigkeit hierfür. Vielmehr soll der Zusammenhang zwischen dem Füllstand, der Aufheizzeit und der Dosierbereitschaft aufgezeigt werden.

Tabelle 5-3: Messreihe zur Füllstandsminderung, Start-Up Unit

Run #1	Run #2	Run #3	Run #4	Run #5
$\Delta m_{\text{NH}_3} = 42 \text{ g}$	$\Delta m_{\text{NH}_3} = 47 \text{ g}$	$\Delta m_{\text{NH}_3} = 51 \text{ g}$	$\Delta m_{\text{NH}_3} = 50 \text{ g}$	$\Delta m_{\text{NH}_3} = 28 \text{ g}$
"Voll"	Gesamt $\Delta m_{\text{NH}_3} = 218 \text{ g}$			"Leer"

In Tabelle 5-3 sind die NH₃ Entnahmemengen aus der Start-Up Unit eines jeden Testlaufs aufgeführt. Die Mengen betragen hierbei stets zwischen 40-50 g. Lediglich beim letzten Test reduziert sich die absolute Menge an dosiertem NH₃ signifikant. Sie beträgt nur noch 28 g. Der Gesamtwert summiert sich auf 218 g NH₃. Die Durchführung der Tests erfolgt bei gleichbleibenden Umgebungsbedingungen von Lufttemperatur, -druck und -feuchte. Gleiches gilt für die Systembedingungen zu Beginn eines jeden Testlaufs. Die Temperatur und der Druck in der Start-Up als auch in der Main Unit sind stets gleich.

Aufheizzeit

Die Aufheizzeit der Start-Up Unit ist ein Äquivalent für die benötigte Zeit zur Betriebsbereitschaft des Dosiersystems. Die Testergebnisse belegen eine Abhängigkeit der Aufheizzeit mit dem jeweiligen Füllstand der Start-Up Unit. Bei einer vollständig befüllten Start-Up Unit beträgt unter Normalbedingungen die Aufheizzeit ca. 60 s. Diese steigt bei Abnahme des Füllstandes stetig an. Bei einem Füllstand von 20 % werden in etwa 250 s benötigt (Abbildung 5-7). Diese Messergebnisse basieren auf der Voraussetzung, dass der Initialdruck in der Start-Up Unit 0,5 bar beträgt. Der Initialdruck ist unter anderem abhängig von der Temperatur, bzw. der Restwärme im Innern der Start-Up Unit.

Im rechten Diagramm der Abbildung 5-7 ist die Aufheizzeit über dem Initialdruck aufgetragen. Die Ergebnisse zeigen, dass eine Systembereitschaft innerhalb von 10 s hergestellt werden kann. Dies wäre der Fall wenn der Initialdruck bei 2 bar liegt. Ein Anwendungsszenario wäre bspw. der Einsatz eines solchen Dosiersystems in einem Fahrzeug mit Dieselmotor und Start-Stopp Applikation. In den Phasen des Motorstillstands würde die Heizung des Dosiersystems aus Gründen einer besseren Energiebilanz ausgeschaltet und erst bei Wiederstart des Motors zuschalten. Die Wärmeisolation der Start-Up Unit

aber auch der Main Unit hat somit einen entscheidenden Einfluss auf die Systembereitschaft. Daneben ist außerdem die Heizcharakteristik entscheidend.

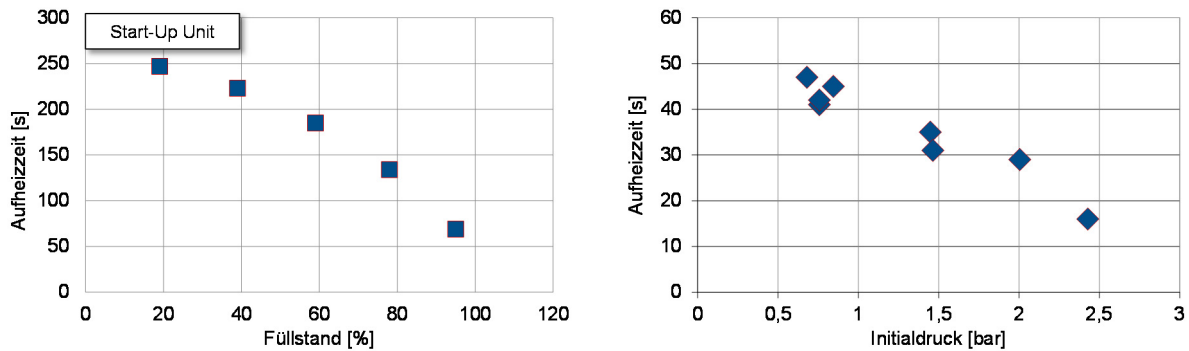


Abbildung 5-7: Aufheizzeiten der Start-Up Unit

Für die Beheizung der Start-Up als auch für die Main Unit existieren unterschiedliche Methoden. Abhängig von der Positionierung der Heizelemente können diese eine Erwärmung der Kartusche von innen nach außen oder in geänderter Anordnung von außen nach innen bewirken. Das untersuchte System hat Units mit einer Heizung in der mittleren Position. Mit diesem Hotspot-Prinzip kann sichergestellt werden, dass in kurzer Zeit eine Grundmenge an NH_3 desorbieren kann. Vergleichbar ist dies mit Systemen für flüssige Reagenzmedien, die im Falle einer Vereisung primär lokal erwärmt werden, um eine Grundversorgung mit AdBlue® sicherzustellen. Auf die chemischen Absorptionsprozesse und das Desorptionsverhalten des NH_3 in Abhängigkeit der Temperatur soll an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden. Vielmehr ist es das Ziel ein Grundsystemverständnis in Bezug auf die Aufheizzeit und deren Abhängigkeiten zu vermitteln.

NH_3 Massenflussrate

Auf Grund der Randbedingungen der durchgeführten Testläufe wird das System an seinen Betriebsgrenzen geführt. Das bedeutet: der eingestellte NH_3 Massenfluss beträgt jeweils ab Systemstart 2,3 g/min und entspricht damit dem Maximalwert. Bereits bei einem Restfüllstand der Start-Up Unit von ca. 60 % kommt es zu ersten Versorgungseinbrüchen (Abbildung 5-8). Es kann nicht ausreichend viel NH_3 desorbieren, um die geforderte Menge für die Dosierung zur Verfügung zu stellen.

Dass dieser Testlauf der Simulation eines worst case Szenarios gleicht und nicht dem alltäglichen Fahrprofil entspricht, belegt das rechte Diagramm in Abbildung 5-8. Der dargestellte Verlauf der NO_x Emissionen für den am Motorprüfstand betriebenen 2,2 l Dieselmotor mit dem Bedarf an NH_3 bei einer Dosierung mit einem Feedverhältnis von $\alpha=1$ zeigt, dass die benötigte NH_3 Massenflussrate in der Regel nicht über 2 g/min hinausgeht und sich nur auf Phasen starker Fahrzeugbeschleunigung beschränkt.

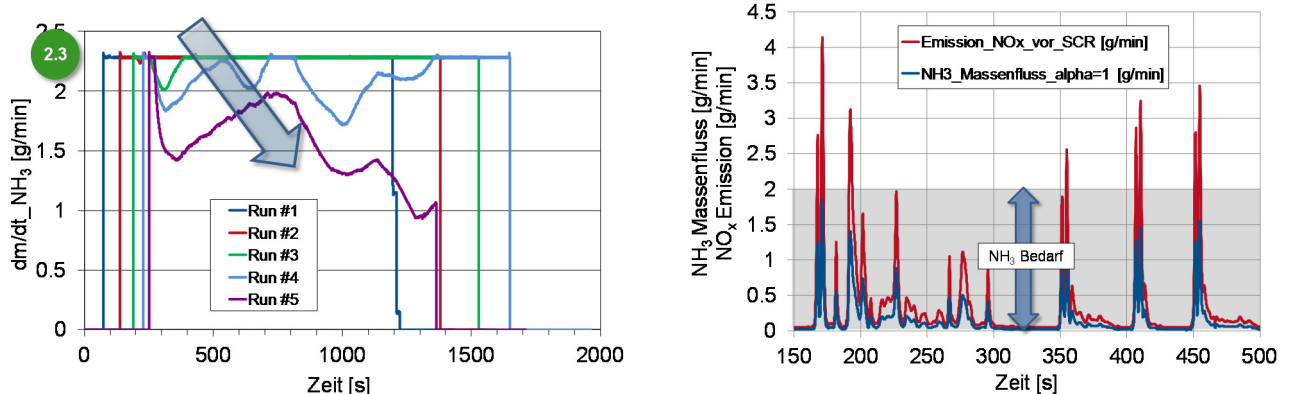


Abbildung 5-8: NH_3 Massenfluss in Abhängigkeit des Füllstands der Start-Up Unit (links), NH_3 Massenfluss im FTP75 bei einem Feedverhältnis $\alpha=1$ (rechts)

Druck

Der Druck sowohl in der Start-Up Unit als auch in der Main Unit ist entsprechend der idealen Gasgleichung (Formel (5-4)) ein Indikator für die Menge an desorbiertem Ammoniak. Der jeweilige Füllstand hat Auswirkung auf die Zeit die benötigt wird, um Systembereitschaft herzustellen. Diese ist bei einem Initialdruck von 2,5 bar in der Start-Up Unit gegeben.

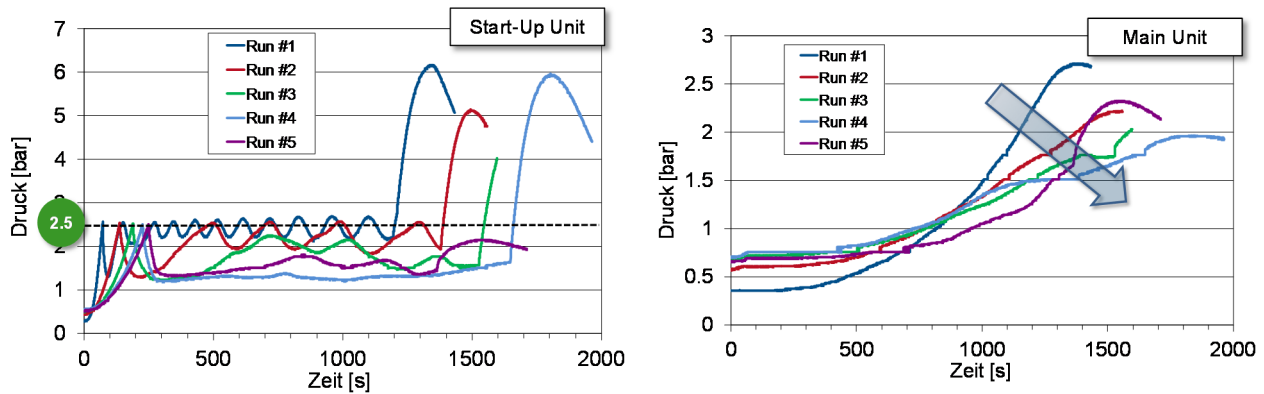


Abbildung 5-9: Druckverlauf Start-Up Unit (links) und Main Unit (rechts)

Aufgrund der Charakteristik der durchgeführten Testprozedur kommt es direkt nach Dosierfreigabe zu einem starken Einbruch des Systemdrucks. Wobei, wie an Hand der NH_3 Massenflussrate gezeigt wird, es zu keiner Einbuße im Massenfluss kommt. Dies gilt jedoch nur solange die Randbedingungen aus Füllstand, Heizleistung und Mengenanforderung dies ermöglichen. Für das Drucksignal stellt sich ein oszillatorischer Verlauf ein. Dieser lässt sich auf die angewendete Heizstrategie für die Start-Up Unit zurückführen. Trotz einer konstanten Entnahme von NH_3 aus der Start-Up Unit wird intermittierend nachgeheizt. Die Frequenzen der Sinus-Schwingungen des Drucksignals werden mit fortschreitender Füllstandminderung kleiner. Letztlich stellt sich ein oszillierender Druckverlauf vergleichbar mit einem Chirp-Verlauf ein (Abbildung 5-9). Eine weitere Füllstandsminderung in den weiteren Testläufen führt letztlich dazu, dass der Systemdruck nach dem erstmaligen Öffnen des Dosierventils zusammenbricht und nicht wieder auf 2,5 bar aufgebaut werden kann. Entsprechend kommt es zu den beschriebenen Einbrüchen in der NH_3 Massenflussrate.

Einen systemkritischen Zustand stellt das Abschalten dar. Das Dosierventil wird geschlossen und die Heizelemente nicht weiter bestromt. Aufgrund der im Innern der Start-Up Unit vorhandenen thermischen Energie kommt es zu einem Wärmestau wodurch weiterhin NH_3 desorbiert aber nicht mehr abgeführt wird. Der Druck im Innern der Start-Up Unit steigt mit einem großen Gradienten auf einen Wert bis zu 6 bar an. Für den Fall eines weiteren unkontrollierten Druckanstiegs ist hier ein Überdruckventil vorgesehen, das bei 7 bar das freigesetzte Ammoniakgas an die Umgebung abführen würde.

Die Beheizung der Main Unit beginnt erst zu dem Zeitpunkt, nachdem die Start-Up Unit erstmalig den Initialdruck von 2,5 bar erreicht hat. Wie in Abbildung 5-9 rechts dargestellt, ist der Gradient des Druckanstiegs verglichen mit dem der Start-Up Unit wesentlich geringer. Dies ist zum einen dem größeren Volumen und zum anderen der Heizstrategie geschuldet. Ein abnehmender Füllstand in der Start-Up Unit führt in der Main Unit zu zunehmenden Aufheizzeiten. Die Begründung ist in der Tatsache zu sehen, dass die zur Verfügung stehende Energie auf beide Units aufgeteilt werden muss. Bei geringem Füllstand in der Start-Up Unit wird primär in diese die Energie eingebracht und so steht weniger für die Main Unit zur Verfügung.

Temperatur

Der proportionale Zusammenhang zwischen Temperatur und Druck spiegelt sich in Abbildung 5-10 wieder. So kann der Temperaturverlauf und die erreichten Spitzenwerte Auskunft über den herrschenden Füllstand der Units geben. Im Falle der Start-Up Unit bedeutet dies, dass bei einer gefüllten Unit die Temperatur im Arbeitsbereich etwa bei 50-60 °C liegt. Die hier bereits desorbierte Menge an NH_3 ist ausreichend für den Aufbau und die Aufrechterhaltung des geforderten Systemdrucks. Im Falle eines geringen NH_3 Füllstandes in der Start-Up Unit steigt die Temperatur zunehmend an und erreicht einen Spitzenwert von ca. 100 °C.

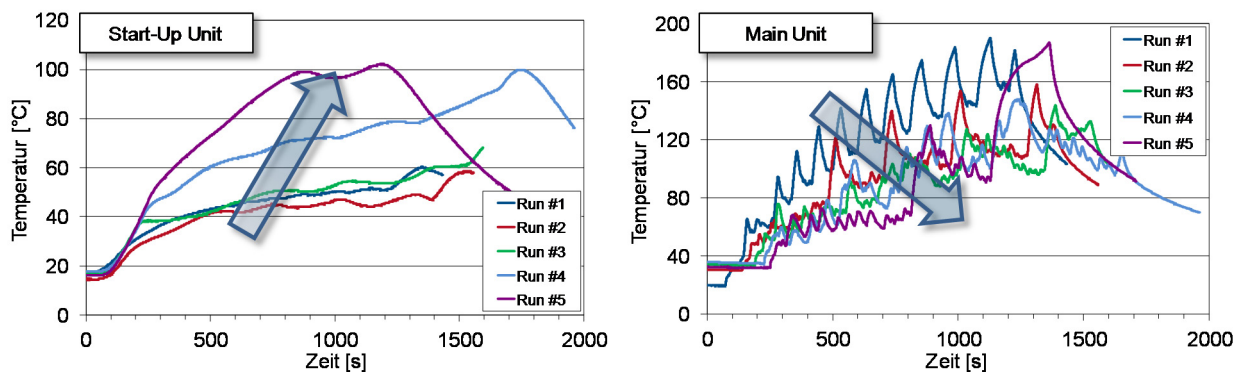


Abbildung 5-10: Temperaturverlauf Start-Up Unit (links) und Main Unit (rechts)

Für die Main Unit lässt sich der Temperaturverlauf ebenfalls mit den Erläuterungen zum Druckverlauf erklären. Die Temperatur in der Main Unit erreicht im Falle einer gefüllten Start-Up Unit einen Wert von 160 °C. Dieser ist jedoch ein lokaler Temperaturwert, da sich der einzige verbaute Temperatursensor in der Nähe des Heizelementes befindet.

Energiebedarf

Eine vergleichende Gegenüberstellung des Energiebedarfs ist in Abbildung 5-11 gegeben. Hier ist stellvertretend für die durchgeführten fünf Testzyklen der zeitliche Verlauf der zugeführten elektrischen Gesamtenergie für den ersten und den letzten Testlauf dargestellt. Im Verlauf der blauen Linie (erster Testlauf, volle Start-Up Unit) sind die vielen Phasen der Energieabschaltung zu erkennen. Die Heizstrategie ist so ausgelegt, dass der volle Energiebedarf nur dann abgerufen wird, wenn der Druck in der Start-Up Unit abfällt und über die Temperatur und schließlich das freigesetzte NH_3 nachgeregelt werden muss. Der absolute Wert der aufgenommenen Energie ist auf 300 W begrenzt. Die Versorgungsspannung im Netz am Motorprüfstand beträgt hierbei 12 V. Im Verlauf der roten Linie (letzter Testlauf, entleerte Start-Up Unit) sind die Phasen der Energieabschaltung seltener. Im Gegensatz zu einem Dosiersystem mit flüssigem AdBlue® als Reagenz muss bei diesem Dosiersystem das Reagenz über die externe Zufuhr von Energie erst noch freigesetzt werden. Dieser Nachteil in der Energiebilanzierung kann aber gegebenenfalls durch den Entfall der Energieaufwendung für eine Pumpeneinheit kompensiert werden.

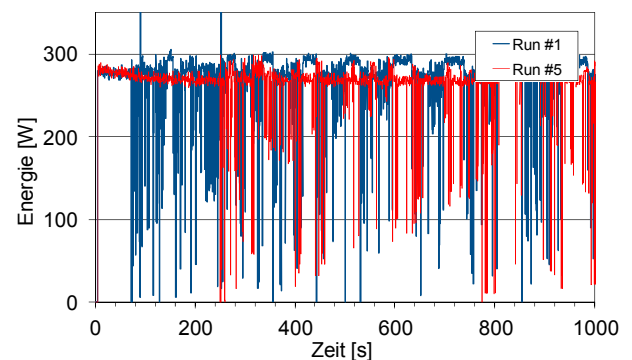


Abbildung 5-11: Energiebedarf

5.1.1.2 Systemverhalten bei Befüllung der Start-Up Unit

Die sichere Wiederherstellung der ursprünglichen Dosierbereitschaft bei einer entleerten Start-Up Unit ist für den Nutzwert des Dosiersystems ein wichtiges Kriterium. Im Folgenden wird untersucht, ob der Prozess der Füllstandsminderung in der Start-Up Unit reversibel ist und wie sich das Systemverhalten in den einzelnen Phasen der Befüllung darstellt. Hierzu wird die Start-Up Unit in definierten Testzyklen mit Ammoniak aus der Main Unit befüllt.

Testprozedur:

- Sieben Testzyklen mit deaktivierter NH_3 Dosierung (0 g/min)
- Die Testdauer bezieht sich auf die Zeit in der das Dosiersystem im *run* Zustand ist.
- Das Füllstandslevel der Start-Up Unit zu Beginn der Messreihe ist geringer als der Wert nach dem letzten Testlauf in der Füllstandsminderungsmessreihe. Der tatsächliche Abolutwert ist nicht bekannt.

Tabelle 5-4: Messreihe zur Befüllung der Start-Up Unit

Run #1	Run #2	Run #3	Run #4	Run #5	geringe Dosierung	Run #6	ohne Dosierung	Run #7
$\Delta\text{Zeit} = 600 \text{ s}$	$\Delta\text{Zeit} = 1200 \text{ s}$	$\Delta\text{Zeit} = 600 \text{ s}$	$\Delta\text{Zeit} = 420 \text{ s}$	$\Delta\text{Zeit} = 600 \text{ s}$	$\Delta\text{Zeit} = 90 \text{ min}$	$\Delta\text{Zeit} = 600 \text{ s}$	$\Delta\text{Zeit} = 90 \text{ min}$	$\Delta\text{Zeit} = 600 \text{ s}$
"Leer"								"Voll"

In Tabelle 5-4 ist der chronologische Ablauf der Testreihe beschrieben. Vor und nach dem Test #6 wurde das Dosiersystem jeweils für die angegebenen Zeiten länger betrieben, um so die sich einstellenden Effekte bei unterschiedlichen Füllständen im Zuge der Befüllung deutlicher darstellen zu können.

Im Allgemeinen ist die Rate der Befüllung abhängig vom vorherrschenden Druck, dem bereits vorliegendem Füllstand der Start-Up Unit und den herrschenden Umgebungsbedingungen, wie bspw. der Temperatur.

Aufheizzeit

Die Aufheizzeit der Start-Up Unit zum Herstellen der Systembereitschaft ist proportional reversibel zum NH_3 Füllstand. Durch die Wiederbefüllung verringert sich die gemessene Aufheizzeit nach jedem Testlauf. Aufgrund der Tatsache, dass der absolute Füllstand nicht angegeben werden kann, können nur relative Angaben und Aussagen getroffen werden. Zu Beginn der Messreihe mit Testlauf #1 bei nahezu leerer Start-Up Unit beträgt die benötigte Aufheizzeit ca. 290 s. Wohingegen sich dieser Wert im letzten Testlauf #7 auf ca. 70 s senken lässt (Abbildung 5-12). Verglichen mit der Aufheizzeit zu Beginn der Messreihe, in der eine gefüllte Start-Up Unit zur Verfügung stand, entsprechen sich die Werte bei Einhaltung der gegebenen Rahmenbedingungen. Es kann somit belegt werden, dass der Prozess reversibel ist und der ursprüngliche Füllstand wieder erreicht wird.

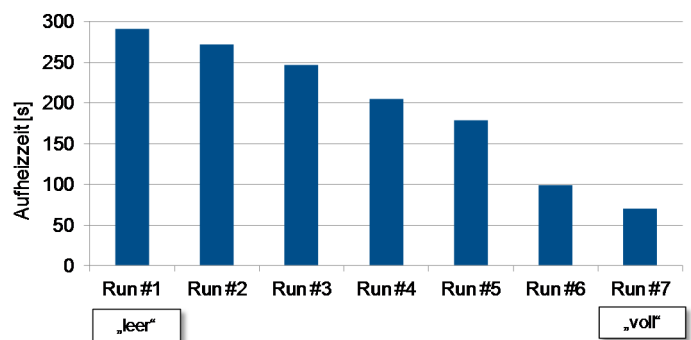


Abbildung 5-12: Aufheizzeiten der Start-Up Unit bei unterschiedlichen Füllständen

Druck

Der charakteristische Verlauf des Drucksignals steht in enger Verknüpfung mit dem Füllstand der Start-Up Unit. Für den Fall einer leeren Start-Up Unit hat die erhöhte Zufuhr an Wärmeenergie zur Folge, dass es zu einem Überschwingverhalten für den sich einstellenden Innendruck der Start-Up Unit kommt, wenn keine NH_3 Entnahme durch eine Dosierung erfolgt. Der Druckanstieg für den Innendruck der Start-Up Unit erreicht einen Maximalwert um 6 bar und fällt danach wieder ab auf den eigentlichen Betriebsdruck von ca. 2,5 bar (Abbildung 5-13). Der Druckabfall liegt darin begründet, dass die Start-Up Unit nicht weiter geheizt wird und die Temperatur damit abnimmt und in Konsequenz der Druck ebenfalls.

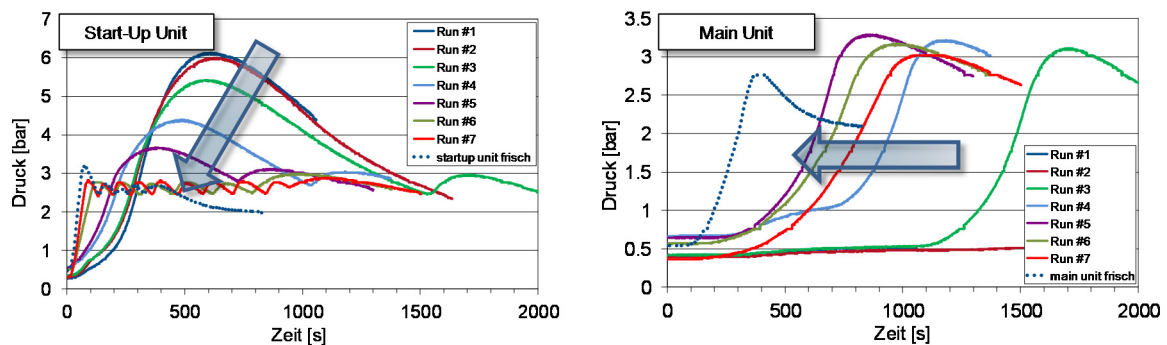


Abbildung 5-13: Druckverlauf im Befüllungszyklus; Start-Up Unit (links), Main Unit (rechts)

Die Druckverläufe der Main Unit zeigen eines ganz deutlich. Der Zeitpunkt des erwarteten Druckanstiegs der Main Unit, also dem Start der Heizphase, stimmt nicht mit dem Zeitpunkt überein, bei dem in der Start-Up Unit die 2,5 bar Innendruck erreicht werden. Hier gibt es einen zeitlichen Verzug. Am Beispiel des zeitlichen Druckverlaufes für Testlauf #3, dargestellt durch die grünen Linie in Abbildung 5-13, soll dieses Verhalten erläutert werden. Die Start-Up Unit erreicht bereits nach 300 s die 2,5 bar Marke. Das System wechselt in diesem Moment vom *start-up* Modus in den *run* Modus. Aber ein Druckanstieg ist tatsächlich erst nach ca. 1000 s nachweisbar. Dies lässt sich damit erklären, dass hier ein Regelalgorithmus hinterlegt ist, der unter Einbeziehung der gegebenen Randbedingungen die Heizenergie bedarfsgerecht zur Verfügung stellt. Der Grund hierfür ist, dass beim Erreichen eines Innendrucks von 2,5 bar in der Main Unit ein Überströmventil öffnet und so die Main Unit mit der Start-Up Unit verbunden ist. Damit jetzt eine Befüllung der Start-Up Unit möglich ist muss sichergestellt sein, dass ein positives Druckgefälle herrscht. Nur so kann das in der Main Unit freigesetzte NH_3 in die Start-Up Unit überströmen. In dem angeführten Beispiel ist dies bei etwa 1500 s der Fall. Im Druckverlauf der Start-Up Unit kommt es aus dem genannten Grund zu einem leichten Anstieg. In der Main Unit kommt es durch die Volumenexpansion und dem damit verbundenen Temperaturabfall zu einem Druckabfall. Wenn die Start-Up Unit gefüllt ist, stellt sich letztlich ein Druckgleichgewicht ein.

Ein weiterer Effekt, der die Drucksensibilität des Systems veranschaulicht und die Notwendigkeit der Druckstabilität der Bauteile unterstreicht ist in Abbildung 5-14 zu erkennen. Wird der *start-up* Modus kurz vor Erreichen der 2,5 bar Einschaltdruckmarke der Main Unit abgebrochen, bspw. durch Ausschalten der Fahrzeugzündung kommt es zu einem raschen Druckanstieg mit großem Gradienten in der Start-Up Unit. Der Grund hierfür ist, dass sich das Überströmventil zwischen Main Unit und Start-Up Unit noch nicht geöffnet hat. Dadurch, dass zudem keine NH_3 Entnahme erfolgt und die bis dahin eingebrachte Wärmeenergie in der Start-Up Unit zu einem Wärmestau führt, desorbiert weiterhin NH_3 und durch den gesteigerten Volumenbedarf bei tatsächlicher Volumenkonstanz steigt der Innendruck. Auch hier werden in der Spitze Druckwerte von 6 bar erreicht. Im Fall der Systemabschaltung nachdem der *run* Status erreicht ist, kommt es dagegen zu einem Druckausgleich zwischen der Start-Up Unit und der Main Unit über das jetzt geöffnete Überströmventil.

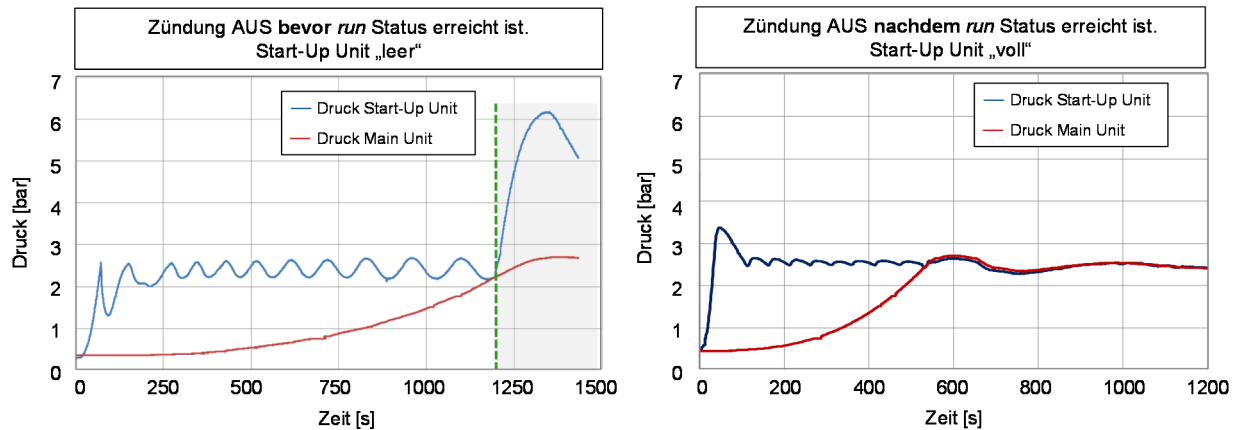


Abbildung 5-14: Druckverlauf beim Ausschalten der Zündung bevor/nachdem der *run* Status erreicht ist

Temperatur

Mit Bezug auf Abbildung 5-4 ist die Temperatur als bestimmender Faktor für das sich einstellende Druckniveau gegeben. Das bedeutet, dass die Temperatur steigen muss, damit NH_3 freigesetzt wird. Mit der Formel (5-4) lässt sich der physikalische Zusammenhang erklären warum die Start-Up Unit im entleerten Zustand mehr beheizt werden muss als im gefüllten Zustand.

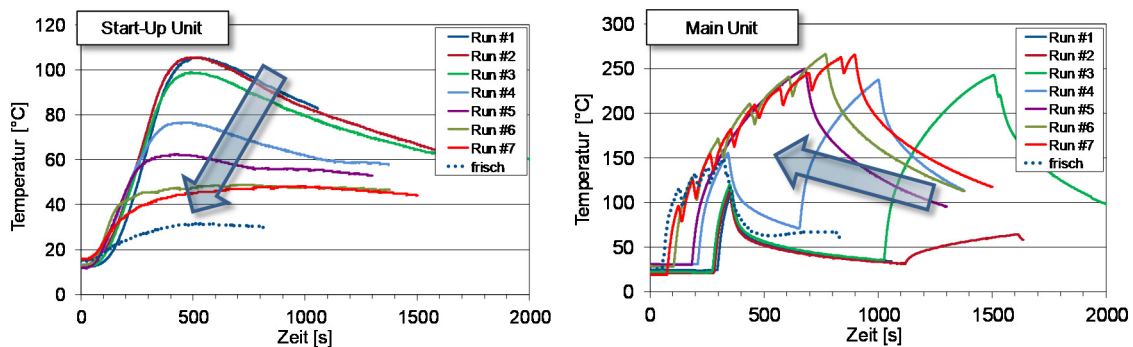


Abbildung 5-15: Temperaturverlauf im Befüllungszyklus; Start-Up Unit (links), Main Unit (rechts)

Die in Abbildung 5-15 dargestellte Kurvenschar der Temperaturverläufe in der Start-Up Unit belegen, dass sich mit steigendem Füllstand die Spitzenwerte der Temperaturen reduzieren. Der Maximalwert von ca. 100 °C im leeren Zustand kann auf 50 °C im gefüllten Zustand verringert werden. Des Weiteren kann im Verlauf der Temperaturen in der Main Unit die Heizstrategie nochmals veranschaulicht werden. Um das Beispiel am Testlauf #3 erneut aufzugreifen, ist im Verlauf der grünen Linie zu erkennen, dass eine erste Heizphase zu dem Zeitpunkt der Umschaltung von *start-up* in den *run* Modus nach ca. 300 s erfolgt. Allerdings wird diese Sekunden später wieder abgebrochen, da in der Start-Up Unit der Druck noch zu hoch ist. Eine weitere Heizphase wird gestartet, wenn der Druck in der Start-Up Unit einen definierten Wert unterschritten hat. Dies ist nach ca. 1000 s der Fall.

5.1.1.3 Systemverhalten im dynamischen Betrieb

Schwingverhalten

Das Über- und Unterschwingverhalten wird mit der Vorgabe eines Rechtecksignals für die Dosiermenge vorgegeben. Es erfolgt eine Umschaltung zwischen 10 % FS und 90 % FS und vice versa.

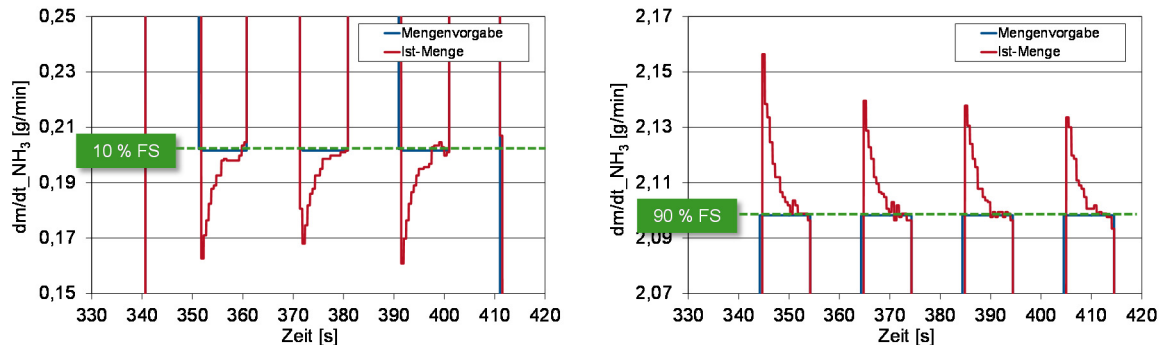


Abbildung 5-16: Schwingverhalten

In beiden Fällen lässt sich die gleiche absolute Abweichung messen. Zwischen der vorgegebenen Mengenanforderung und der tatsächlich dosierten NH_3 Menge liegen in der Einschwingphase maximal $\pm 0,02 \text{ g/min}$. Dies entspricht einer relativen Abweichung von maximal +1,4 % in der steigenden Flanke und -15 % in der fallenden Flanke. Die Einschwingzeit kann mit ca. 5 s angegeben werden.

Latenzzeit

Ein Vorteil der direkten gasförmigen NH_3 Dosierung im Vergleich zu einer flüssigen AdBlue® Dosierung ist, dass die Thermo- und Hydrolysereaktion entfällt. Um diesen zeitlichen Vorteil durch den Entfall der erforderlichen Vorreaktionen zu nutzen ist im Falle einer Dosierstrategieauslegung, die auch in hoch dynamischen Fahrprofilen eine zeitlich präzise und bedarfsgerechte Dosierung ermöglicht, die Vorhaltung von Ammoniak ein wichtiger Aspekt. Nur so kann gewährleistet werden, dass in dem Moment in dem NO_x durch Messung oder RT-Simulationsmodelle erkannt wird auch NH_3 zugeführt werden kann. Im Vergleich zu Injektoren für die flüssige Dosierung, bei denen stets der Systemdruck am Injektor direkt anliegt und durch eine entsprechende Ansteuerung eingespritzt werden kann, ist es bei einem gasförmigen Injektor etwas anders. Der Injektor ist in der Regel ein offenes System und er wird auch nicht elektrisch angesteuert. Die Einspritzmengenzuweisung erfolgt mittels eines vorgeschalteten Massenflussreglers. Dieser ist in der Regel direkter Bestandteil des Dosiersystems. Dies birgt eine Schwachstelle im Gesamtsystem. Denn dadurch ist es erforderlich, dass in der Nähe des Injektors ein Rückschlagventil vorhanden ist, damit der Leitungsdruck in den Phasen der Nulldosierung aufrecht gehalten werden kann. Zur Bewertung des Latenzzeitverhaltens ist am Motorprüfstand ein System aufgebaut, das in seinen Dimensionen mit einer Systemlösung für eine Fahrzeuganwendung vergleichbar ist. So ergibt sich eine NH_3 Zuleitung mit einer Gesamtlänge von 300 cm. Für die Dosierung muss der Öffnungsdruck des Rückschlagventils in der Leitung aufgebaut und überschritten werden. Die Messungen werden wie folgt durchgeführt.

- Erfassung des Druckanstiegs hinter dem Rückschlagventil mittels zusätzlichem NH_3 Drucksensor.
- Der Öffnungsdruck des Rückschlagventils beträgt 0,07 bar. → Bewertungskriterium für ein geöffnetes Rückschlagventil: Der erfasste Druckanstieg beträgt 0,02 bar.

Abbildung 5-17 zeigt den schematischen Aufbau der experimentellen Untersuchung. Das Dosiersystem ist mit einem Rückschlagventil über die dafür vorgesehene NH_3 Versorgungsleitung verbunden. Direkt dahinter ist ein zusätzlicher NH_3 Drucksensor angebracht, um die Druckänderung in Folge des sich öffnenden Rückschlagventils zu erfassen.

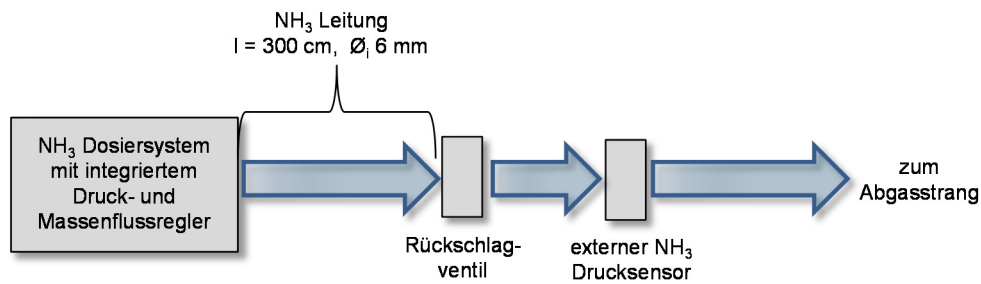


Abbildung 5-17: Setup zur experimentellen Latenzzeitbestimmung

Für die Durchführung der Messreihe wird die NH_3 Mengenvorgabe in diskreten Schritten beginnend mit 2,3 g/min auf 0,1 g/min reduziert. Der erfasste Druckverlauf ist in Abbildung 5-18 im linken Diagramm dargestellt.

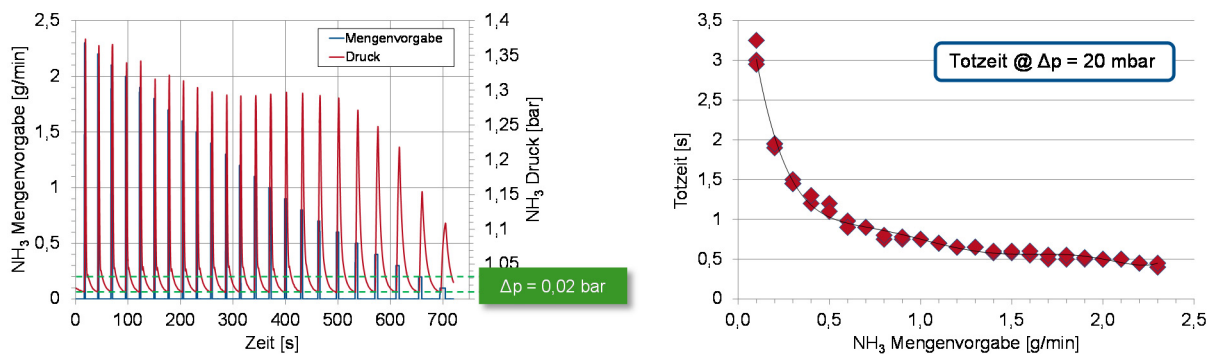


Abbildung 5-18: Latenzzeitmessung

Mit der Definition, dass ein Durchfluss erfolgt, wenn der nachgeschaltete Drucksensor eine Druckerhöhung von mindestens 20 mbar detektiert, ergibt sich der in Abbildung 5-18 im rechten Diagramm dargestellte Verlauf. Die Latenzzeit steht in einem exponentiellen Zusammenhang zu der NH_3 Mengenvorgabe. Bei einer hohen Mengenvorgabe beträgt die gemessene Latenzzeit ca. 0,5 s. Dieser Wert ist nahezu konstant ab einer Mengenvorgabe von 1,5 g/min bis zum Maximalwert von 2,3 g/min. Die Abtastrate der Aufzeichnung ist auf 20 Hz begrenzt. Für den am Motorprüfstand eingesetzten Motor beträgt während eines Zertifizierungszyklus, wie bspw. dem NEDC oder dem FTP75, die tatsächlich benötigte spezifische NH_3 Menge, um ein Feedverhältnis von $\alpha=1$ zu realisieren, 0 g/min bis 1,5 g/min (vgl. Abbildung 5-8). Bei sehr geringen Dosieraten von 0,1 g/min steigt die gemessene Latenzzeit auf bis zu 3 s an. Immer unter der Voraussetzung einer vorangegangenen Nulldosierung mit geschlossenem Rückschlagventil. Anhand dieser Ergebnisse kann belegt werden, dass eine zeitsynchrone Dosierung von NH_3 zu dem vorhandenen NO_x im Abgas nicht möglich ist. An dieser Stelle sei die zusätzlich vorhandene Latenzzeit für die Erfassung und Verarbeitung außer Acht gelassen. Die gemessene Latenzzeit ist vor allem der langen Zuleitung geschuldet. Denn das Leitungsvolumen ist ein entscheidender Faktor für die Latenzzeit. Die NH_3 Zuleitung hat die folgenden Maße: 300 cm Länge bei einem Innendurchmesser von 6 mm. Zudem ist sie aus einem flexiblen Material. Dies ermöglicht eine gute Schwingungsabsorption und einen hohen Freiheitsgrad bei der Leitungsverlegung im Unterboden eines Fahrzeuges. Aber in Hinblick auf eine geringe Latenzzeit wäre eine kurze Zuleitung aus einem starren und somit gegenüber Druckpulsationen resistenten Material idealer.

Mit Kenntnis der Ergebnisse aus der Untersuchung zum Latenzzeitverhalten lässt sich bereits an dieser Stelle für die zu applizierende NH_3 Dosierstrategie eine wichtige Grundfunktion postulieren. Da eine zeitsynchrone NH_3 Dosierung nicht möglich ist, muss im SCR Katalysator stets eine gespeicherte Menge an NH_3 vorgehalten werden, um in Beschleunigungsphasen auftretende NO_x Peaks konvertieren zu können.

Energiebedarf

Zum Betrieb des Dosiersystems ist es erforderlich elektrische Energie zuzuführen. Diese wird vor allem für die Beheizung der Start-Up Unit und der Main Unit benötigt. Aber auch die peripheren Komponenten, wie z.B. die ECU des Dosiersystems, der Druckregler und der Durchflussregler sind auf elektrische Energie angewiesen. Aufgrund dessen wird der Bedarf an elektrischer Energie ermittelt. Der Grundumsatz im betriebsbereiten Systemzustand (*run* Modus) und Nulldosierung kann mit ca. 20 W angegeben werden. Zur Bestimmung des Energiebedarfs während der Dosierung wird eine Messreihe gemäß der linken Darstellung in Abbildung 5-19 durchgeführt.

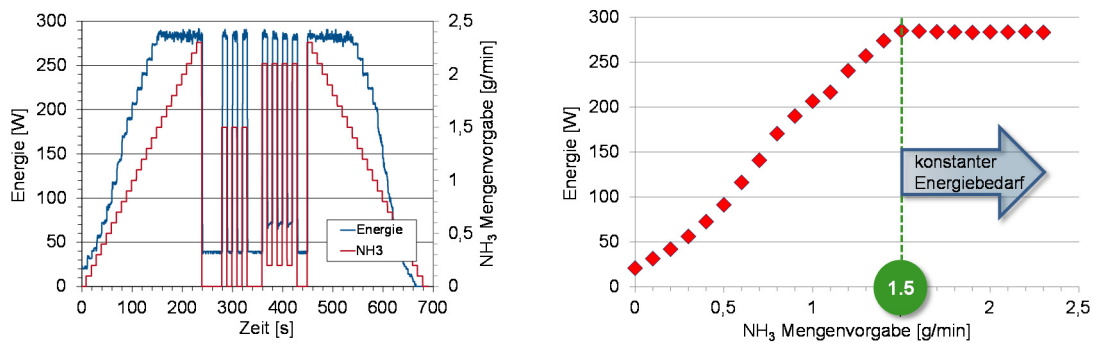


Abbildung 5-19: Energieaufnahme in Abhängigkeit der NH₃ Dosiermenge

In diskreten Schritten wird beginnend mit der Nulldosierung die Dosiermengenvorgabe kontinuierlich bis auf den Maximalwert von 2,3 g/min gesteigert. Das Ergebnis zeigt eine direkte Abhängigkeit des Energiebedarfs von der Dosiermengenvorgabe. Jedoch existiert eine Limitierung. Die gemessene Energie übersteigt nicht den Wert von 294 W. Gemäß der rechten Darstellung in Abbildung 5-19 bedeutet dies, dass ab einer Dosiermengenvorgabe von 1,5 g/min der Maximalwert der Energieaufnahme erreicht ist und nicht weiter gesteigert wird auch wenn eine höhere Dosiermenge abverlangt wird. Aus dem Ergebnis kann ein linear proportionaler Zusammenhang hergestellt werden, der sich mathematisch näherungsweise durch nachstehende Gleichung (5-5) ausdrücken lässt.

$$y [W] = 180 * x \left[\frac{g}{min} \right] + 20 \text{ mit } [0; 1,5] = \{x \in \mathbb{R} \mid 0 \leq x \leq 1,5\} \quad (5-5)$$

$$y [W] = const. \quad \text{mit }]1,5; 2,3] = \{x \in \mathbb{R} \mid 1,5 < x \leq 2,3\} \quad (5-6)$$

Für die Bewertung des Energiebedarfs im dynamischen Anwendungsfall werden zwei Sprungversuche durchgeführt. Zum einen eine Reihe mit 0 auf 1,5 g/min und zum anderen eine mit einem Dosiermengenvorgabesprung von 10 auf 90 % FS. Der Energiebedarf in den durchgeführten transienten Messreihen liegt bei Mengenvorgaben kleiner 1,5 g/min tendenziell höher als für die stationäre Messung. So fällt der gemessene Energiebedarf in den Phasen der Nulldosierung nicht unter 40 W. Hier kommt es zu Superpositionseffekten resultierend zum einen aus der Heizstrategie und der damit verbundenen Bereitstellung von NH₃ und zum anderen von der tatsächlich abgeführten NH₃ Menge und des dafür eigentlich erforderlichen Energiebedarfs.

Im Fall des Testzyklus ist zu Beginn die Energieaufnahme zur Aufheizung der beiden Units maximal. In den ersten beiden Phasen des FTP75 ist die tatsächliche Energieaufnahme sehr stark geprägt von dem Wechselspiel zwischen dem Heizen und somit der Desorption von NH₃ und zum anderen durch die unregelmäßige NH₃ Entnahme zur Dosierung. Hingegen in der dritten Phase nach der 10 minütigen Motorstillstandzeit nimmt der Energiebedarf ab, da nun die Systemtemperatur und somit der Systemdruck so hoch ist, dass die Verfügbarkeit an NH₃ gewährleistet ist.

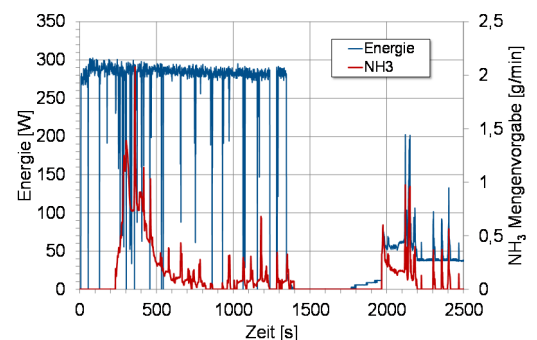


Abbildung 5-20: Energiebedarf im FTP75 Zyklus

5.2 Auslegung und Untersuchung unterschiedlicher NH₃ Düsengeometrien

In einer methodischen Herangehensweise wird ein Gestaltungskonzept für das Design der NH₃ Düsengeometrie erarbeitet. Hierzu wird zunächst die erforderliche NH₃ Menge während eines Zyklus bestimmt. Das Feedverhältnis α in Gleichung (5-7) beschreibt das Verhältnis zwischen der zugeführten Menge an Ammoniak und der tatsächlich vorhandenen Stickoxidgehalt im Abgas.

$$\text{Feedverhältnis} \quad \alpha = \frac{\frac{\dot{m}_{NH_3}}{M_{NH_3}}}{\frac{\dot{m}_{NO_x}}{M_{NO_x}}} \quad (5-7)$$

\dot{m}_{NH_3}	Dosierter NH ₃ Massenfluss [g/min]
M_{NH_3}	Molare Masse von NH ₃ [g/mol]
\dot{m}_{NO_x}	NO _x Emission im Abgas [g/min]
M_{NO_x}	Molare Masse von NO _x [g/mol]

Basierend auf der Annahme einer vollständigen NO_x Konvertierung wird mit einem Feedverhältnis von $\alpha = 1$ gerechnet. Als Bemessungsgrundlage dient ein FTP75 Zyklus. Dieser ist charakterisiert durch seine hohen Dynamikanteile und den daraus resultierenden hohen NO_x Emissionspeaks (vgl. Abbildung 5-8). In der Spitze werden NO_x Emissionen von 4 g/min erreicht. Entsprechend dem NO₂/NO_x Verhältnis variiert der tatsächliche Bedarf an NH₃ zwischen 2,3 g/min (bei theor. 100 % NO) und 1,5 g/min (bei theor. 100 % NO₂). Wie im vorangegangenen Kapitel im Detail untersucht, ermöglicht das Dosiersystem diese NH₃ Dosieraten. Um das gasförmige NH₃ in den Abgasstrang zu dosieren, ist allerdings eine dafür ausgelegte NH₃ Düsengeometrie notwendig.

Für die Auslegung der NH₃ Düsengeometrie wird, basierend auf dem Gesetz von Hagen-Poiseuille (5-8), bei einer laminaren Rohrströmung eines homogenen Newtonschen Fluids der sich einstellende Differenzdruck (5-9) als Auslegungsgröße definiert.

$$\text{Gesetz von Hagen-Poiseuille:} \quad \dot{V} = \frac{\pi \cdot r^4 \cdot \Delta p}{8 \cdot \eta \cdot l} \quad (5-8)$$

$$\text{daraus folgt} \quad \Delta p = \frac{8 \cdot \eta \cdot l \cdot \frac{\dot{m}}{\delta}}{\pi \cdot r^4} \quad (5-9)$$

Mit der Vorgabe, dass der sich einstellende Druck des Reagenzmittels am Injektor noch mindestens 2 bar betragen muss, um so zu vermeiden, dass es zu einer Rückströmung bedingt durch den vorhandenen Abgasgegendruck kommt, wird das Folgende festgelegt. Im Falle eines Betriebsdrucks von 2,5 bar im Dosiersystem wird der sich einstellende Druckabfall über die Länge der Dosierleitung mit maximal 0,5 bar als noch zulässig angenommen. Entsprechend den Ergebnissen wird für eine 300 cm lange Dosierleitung mit 6 mm Innendurchmesser die maximal zulässige Anzahl an Austrittsöffnungen am Injektor und die jeweiligen Bohrungsdurchmesser gemäß Formel (5-10) bestimmt.

$$A = \frac{\dot{m}}{\mu \cdot \sqrt{2 \cdot \delta \cdot (p_D - p_E)}} \quad \text{mit} \quad d = \sqrt{\frac{4 \cdot A}{i \cdot \pi}} \quad (5-10)$$

Die Ergebnisse einer zusätzlich durchgeführten CFD Simulation zeigen, dass bei der Wahl der Bohrungsdurchmesser eine Anordnung mit konstantem Wert einer Anordnung mit gestuften unterschiedlichen Bohrungsdurchmessern vorzuziehen ist. Ausgehend von den hergeleiteten Erkenntnissen werden drei unterschiedliche NH₃ Düsengeometrien entworfen, gefertigt und untersucht.

5.2.1 NH₃ Düsengeometrie

Aufgrund der unterschiedlichen Stoffeigenschaften zwischen der flüssigen harnstoffwässrigen Lösung und dem gasförmigen Ammoniak ergeben sich grundsätzlich unterschiedliche Anforderungen in Bezug auf die Düsengeometrie. Neben den Unterschieden in Bezug auf die chemischen Stoffeigenschaften, wie z.B. die Dichte, die dynamische Viskosität, den Gefrierpunkt usw. unterscheiden sie sich auch in Bezug auf den erforderlichen Systemdruck. Dosiersysteme mit flüssigem Reagenz für Anwendungen im PKW arbeiten meist mit einem Betriebsdruck von 5-10 bar. Der relativ hohe Druck ist in diesem Fall erforderlich, da diese Systeme im Gegensatz zu Anwendungen im Heavy Duty Sektor über keine Druckluftunterstützung und somit über keine Zwei-Stoff-Einspritzung verfügen und allein durch den hohen Einspritzdruck eine bestmögliche Zerstäubung erzielen müssen. Die verwendeten Drall-Injektoren generieren in der Regel eine vollkegliche Sprayausbildung und keinen einzelnen Einspritzstrahl. AdBlue® Injektoren sind in der Regel komplexe Bauteile mit integrierter Elektronik zur Steuerung und Elementen zur Kühlung und somit kostenintensive Bauteile. Für die gasförmige NH₃ Dosierung in das Abgasrohr genügen Systeme geringer Komplexität und Funktionalität. Zur Bewertung der Effizienz solch einfacher Geometrien werden die drei nachfolgend beschriebenen Düsengeometrien analysiert.

Gerade Düse

Die gerade Düse (Stabdüse) hat insgesamt 13 Bohrungen über den Umfang verteilt. Wobei die Bohrungen in drei Reihen angebracht sind. Die beiden Reihen in Strömungsrichtung verfügen über jeweils fünf Bohrungen in V-Stellung mit einem Winkel von 90°. Wobei die Winkelhalbierende die Mittelebene schneidet. Die drei Bohrungen auf der Rückseite sind entgegen dem Abgasstrom gerichtet. Diese Form der Düsengeometrie erlaubt eine NH₃ Dosierung nur axial zur Abgasströmung.

L-Profil Düse

Um den Umfang sind insgesamt 8 Bohrungen mit einem Winkelversatz von jeweils 45° zueinander verteilt. Diese Form des Versatzes erlaubt eine radiale NH₃ Dosierung von der Mitte des Abgasrohres hin zu der Abgasrohrwand. Des Weiteren besteht die Option auf der Stirnseite am Ende der Düse eine weitere Öffnung anzubringen, damit eine axiale Dosierung in Abgasströmungsrichtung möglich ist.

Ring-Düse

Mit der Ring-Düse wird das Dosierkonzept geändert. Hierbei wird ausgehend von der Abgasrohrwand in Richtung der Abgasrohrmitte dosiert. Dies erfolgt mittels der Anordnung von 4 Bohrungen in einem Winkel von 45° zu der waagerechten Mittelebene. So erhält das dosierte Ammoniak einen radialen und axialen Geschwindigkeitsvektor. Für einen Vergleich existiert noch eine weitere Ring-Düse mit 8 Bohrungen. Diese sind äquidistant über den Umfang verteilt und dosieren nur in axiale Richtung zur Abgasströmung ein.

In Abbildung 5-21 sind die beschriebenen Düsengeometrien dargestellt.

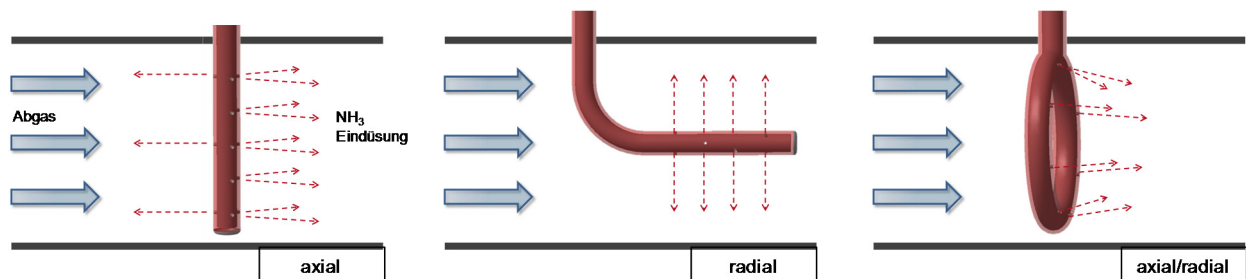


Abbildung 5-21: Übersicht der NH₃ Düsengeometrien

Die Düsen sind alle aus Edelstahlrohren gefertigt und haben einen Außendurchmesser von 8 mm und einen Innendurchmesser von 6 mm. Der Kerndurchmesser aller Bohrungen beträgt 1 mm.

Zur Bewertung der drei Düsenkonzepte werden Messungen am Motorprüfstand und in der CFD Simulation durchgeführt. Das Ziel ist hierbei der Kenntniserwerb über das Strömungsverhalten und vor allem über die Güte der NH_3 Gleichverteilung innerhalb des Abgasmassenstroms. Aus diesem Grund werden auch optische Untersuchungen am Strömungsprüfstand durchgeführt. Aufgrund der einfachen und materialreduzierten Düsengeometrien wird auf eine detaillierte Untersuchung des Gegendruckverhaltens verzichtet.

5.2.2 Methodik der Gleichverteilungsvermessung

Bei der Dosierung von NH_3 in das Abgas ist die Gleichverteilung ein wichtiger Aspekt. Das Ideal stellt hierbei die homogene Verteilung dar. Ziel ist es, mit den entworfenen Düsengeometrien und den gegebenen Rahmenbedingungen dem Ideal möglichst nahe zu kommen.

Der erste Teil der Untersuchung erfolgt am Motorprüfstand. Hierzu werden die einzelnen Düsen nacheinander in den Abgasstrang eingebaut. Die Einbauposition befindet sich 1060 mm stromaufwärts vor dem SCR Katalysator (abweichend zu Abbildung 5-22 wird ein gerades Rohr mit 57 mm Innendurchmesser verwendet). Um die Vermischung zusätzlich zu verbessern, ist in allen Messungen vor dem Einströmkonus des SCR Katalysators ein Mischelement verbaut. Dieses besteht aus sechs an der Rohrwand angebrachten und in sich tordierten Flügelementen (Abbildung 5-22, links).

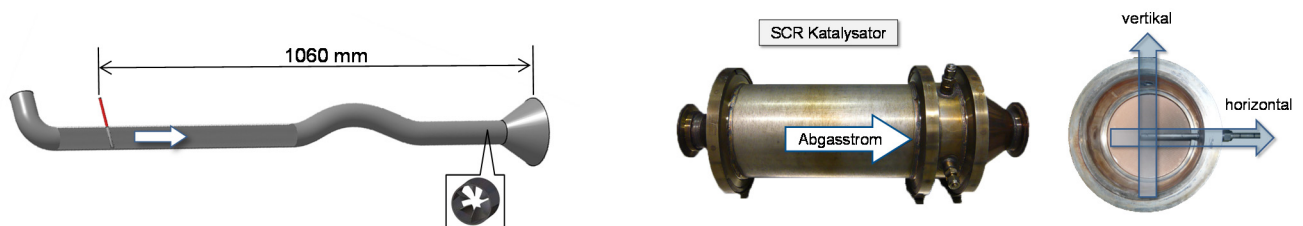
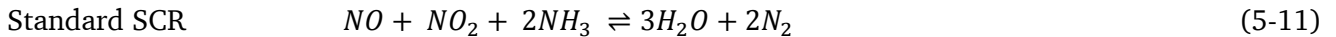


Abbildung 5-22: Prüfaufbau zur Bestimmung der NH_3 Gleichverteilung am Motorprüfstand

Für die eigentliche Messung der Gleichverteilung wird NH_3 mit einem Feedverhältnis $\alpha > 1$ dosiert, so dass sich hinter dem SCR Katalysator ein konstanter NH_3 Schlupf einstellt. Dieser NH_3 Schlupf wird mittels einer Messsonde erfasst, die in variablen Tiefenpositionen über den gesamten Querschnitt des Cannings positionierbar ist. Die Orientierung der Messsonde erfolgt in horizontale und vertikale Richtung (Abbildung 5-22, rechts). Auf eine segmentweise Abtastung des gesamten Querschnitts wird verzichtet, da hierdurch kein zusätzlicher Erkenntnisgewinn zu erwarten ist. Als NH_3 Analysator wird ein ABB Limas verwendet. Prinzipiell bestehen zwei Möglichkeiten des Messaufbaus. Der SCR Katalysator kann entweder vor oder hinter der Messgasentnahme verbaut werden. Die Vorteile der einen Variante sind zugleich die Nachteile der jeweils anderen Variante. Erfolgt die Gleichverteilungsmessung vor dem SCR Katalysator, so würde unter dem Einfluss des Mischelementes eine stark turbulente Strömung vorliegen. Dies hätte einen zu großen Einfluss auf die Güte der ermittelten Messergebnisse. Daher wird die Methode der Messung hinter dem SCR Katalysator präferiert. Durch die Honeycomb-Struktur des Substrates erfolgt eine Gleichrichtung der Strömung. Dies mindert den Einfluss auf die Messwerte. Die sekundären Effekte stellen allerdings die Nachteile hierbei dar. So hat bspw. der Alterungszustand, eine ungleichmäßige Washcoat-Beschichtung oder auch ein inhomogenes Temperaturprofil über das Volumen des SCR Katalysators ganz entscheidenden Einfluss auf die lokale NO_x Konvertierung und somit den lokalen NH_3 Umsatz. Aufgrund der Tatsache, dass es sich hier um einen degree- ned SCR Katalysator handelt wird die NH_3 Gleichverteilungsmessung trotz der aufgeführten Unbekannten hinter eben diesem durchgeführt. Unter der Voraussetzung, dass sich die Methode der Messung nicht ändert, ändert sich auch nichts an der Vorgehensweise zur Interpretation der Messergebnisse. Für die angestrebte Bewertung der Düsengeometrien zählt vordergründig nur der relative Vergleich.

Ergänzend sei noch eine weitere Methode der Gleichverteilungsmessung dargestellt. Hierbei kann durch der Tatsache, dass die Reaktion von NO_x mit NH_3 exothermen Charakter hat, an Hand der frei-

gesetzten Reaktionsenthalpie und der sich einstellenden Temperaturänderung die Gleichverteilung bestimmt werden. Die Formeln (5-11) und (5-12) beschreiben hierzu den chemischen Zusammenhang.



Reaktionsenthalpie $\Delta H_{\text{Reaktion}}^0 = \sum \Delta H_{f,\text{Produkt}}^0 - \sum \Delta H_{f,\text{Reaktant}}^0$ (5-12)

Standardbildungs- enthalpie	$\Delta H_{f,N_2}^0 = 0 \text{ kJ/mol}$	$\Delta H_{f,H_2O(g)}^0 = -242 \text{ kJ/mol}$
	$\Delta H_{f,NO}^0 = 90 \text{ kJ/mol}$	$\Delta H_{f,NO_2}^0 = 33 \text{ kJ/mol}$
	$\Delta H_{f,NH_3(g)}^0 = -46,1 \text{ kJ/mol}$	

$$[3 \times \Delta H_{f,H_2O(g)}^0 + 2 \times \Delta H_{f,N_2}^0] - [\Delta H_{f,NO}^0 + \Delta H_{f,NO_2}^0 + 2 \times \Delta H_{f,NH_3(g)}^0] = -756,8 \text{ kJ/mol}$$

Der Vorteil dieser Methode im Vergleich zu der angewandten ist, dass hierfür kein NH_3 Analysator erforderlich ist. Die Güte der Messung wird primär durch die Anzahl und Qualität der installierten Temperatursensoren bestimmt. Ein Nachteil dieser Messmethode ist in der Betriebspunktabhängigkeit zu sehen. Gerade bei niedrigen Lastpunkten und somit geringen Katalysatortemperaturen sind die eingesetzten Reaktionspartner nur in geringen Mengen vorhanden, so dass sich nur eine geringe Temperaturerhöhung mit entsprechend schwach ausgeprägter Temperaturverteilung einstellt.

Abgasmassenstrom	393 kg/h
NO_x vor SCR	718 ppm
NO_x hinter SCR	67 ppm
dosierte AdBlue® Menge	$\alpha=0,9$
gemittelte Temperatur SCR	307 °C
Raumgeschwindigkeit	17800 1/h
Dimension SCR Katalysator	10,5" x 6"

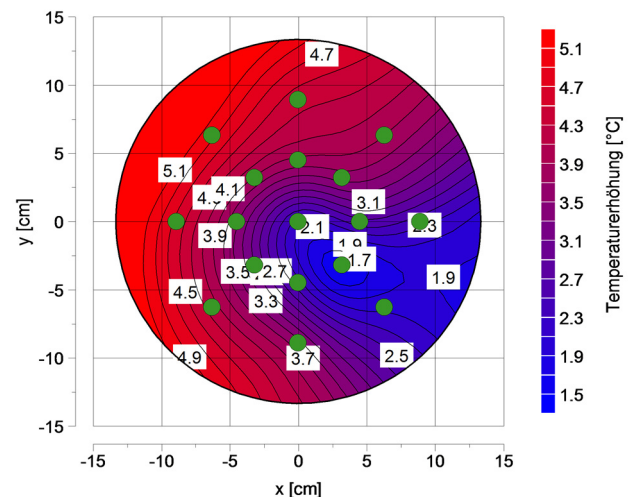


Abbildung 5-23: Bestimmung der NH_3 Verteilung mittels Temperaturmessung

Mit dem in Abbildung 5-23 beispielhaft für einen Motorbetriebspunkt dargestellten Temperaturkollektiv ergibt sich eine maximale relative Temperaturerhöhung von 5,1 °C bei einer gemittelten absoluten Temperatur von 307 °C im SCR Katalysator. Der absolute Temperaturanstieg liegt somit zwischen 0,5-1,7 %. Die vom Hersteller angegebene Messgenauigkeit der verwendeten Thermoelemente liegt bei 0,004*t. Dies entspricht bei 307 °C einer Messunsicherheit von ca. 1,2 °C. In diesem Fallbeispiel entspräche dies einem relativen Fehler je nach Messpunkt zwischen 23-70 %.

Aufgrund dieser Ergebnisse wird für die NH_3/NO_x Gleichverteilungsmessung am Motorprüfstand auf die Temperaturmethode verzichtet.

Die Messreihen werden wie folgt durchgeführt: In jeder Düsenposition wird bei zwei unterschiedlichen Motorbetriebspunkten eine Gleichverteilungsmessung hinter dem SCR Katalysator durchgeführt.

	Motordrehzahl [min^{-1}]	Motordrehmoment [Nm]	Abgasmassenstrom[kg/h]
niedrige Last	1500	72	94
hohe Last	3000	150	297

Motorprüfstandmessung

Im Vergleich der einzelnen Varianten der Düsengeometrien zeigen sich große Unterschiede in Bezug auf die sich einstellende Gleichverteilung (Abbildung 5-24).

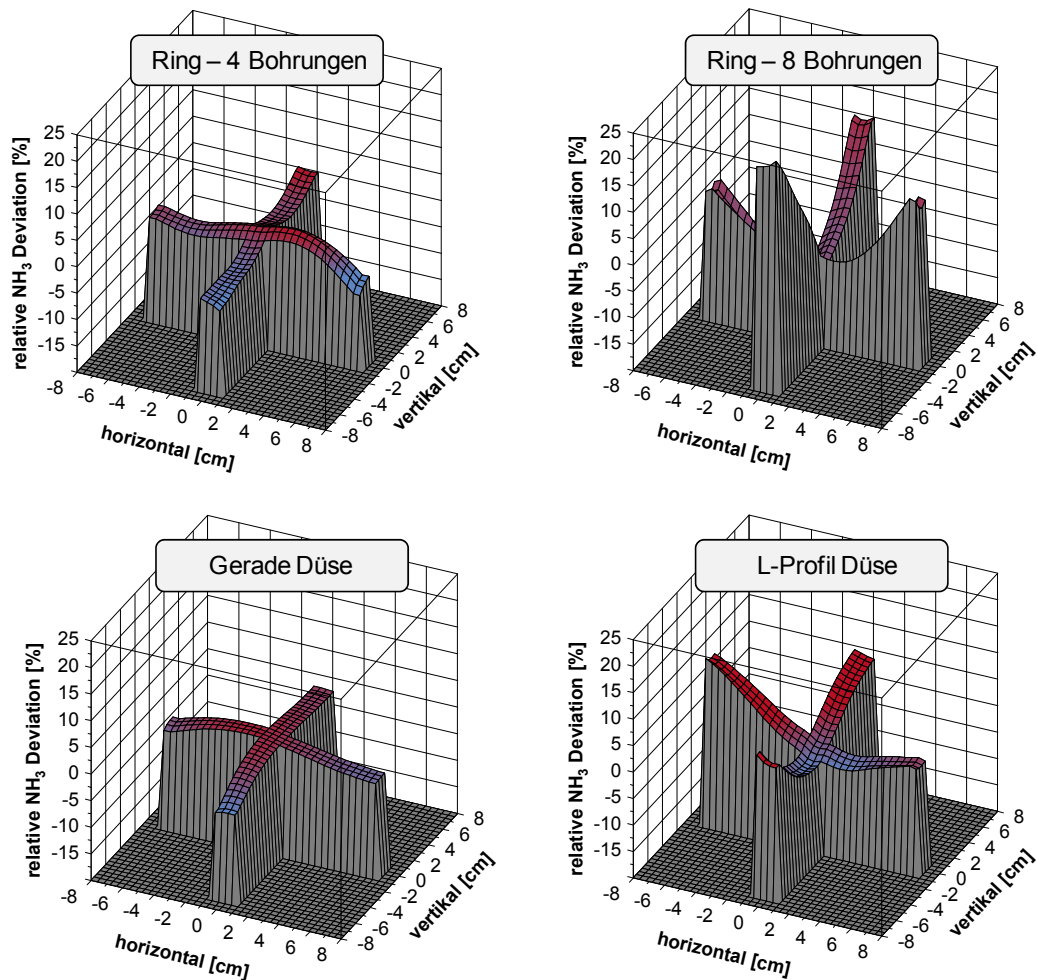


Abbildung 5-24: NH_3 Gleichverteilung - gemessen am Motorprüfstand

Mit den gemessenen Strömungsprofilen kann eine Klassifizierung zur Einstufung der Düsengeometrien vorgenommen werden. Die Ringdüse mit den 4 Bohrungen generiert eine bessere NH_3 Gleichverteilung als die Ringdüse mit 8 Bohrungen. Die Ursache hierfür ist in der Anordnung der Bohrungen zu sehen. Wie zuvor erläutert ist der Gasaustritt der 8-Loch Ringdüse parallel zum Abgasmassenstrom. Somit hat der NH_3 Austrittsvektor nur eine axiale Komponente in direkter Rohrwandnähe. In Kombination mit dem verbauten Mischelement bekommt das NH_3 Gas aufgrund des Anströmungsprofils einen Drall aufgeprägt und es erfolgt keine ausreichende Durchmischung mit dem Abgas. Der SCR Katalysator wird somit vornehmlich nur in seinen Randzonen mit NH_3 beaufschlagt. Ein vergleichbares Ergebnis stellt sich bei der L-Profil Düse ein. Hier bewirken die rein radialen NH_3 Austrittsvektoren eine NH_3 Strömung in Richtung der Abgasrohrwand. Die Ausprägung ist jedoch stark vom Betriebspunkt abhängig und wird in der folgenden optischen Analyse verdeutlicht. Um die L-Profil Düse unabhängig vom vorherrschenden Abgasmassenstrom zu machen und somit in jedem beliebigen Motorbetriebspunkt eine gute NH_3 Gleichverteilung zu gewährleisten müsste der Systemdruck im Dosiersystem permanent geregelt werden, vergleichbar mit einem Common Rail System bei DI-Motoren. Der Systemaufwand würde jedoch steigen. Eine vergleichsweise gute NH_3 Gleichverteilung lässt sich durch die 4-Loch Ringdüse und die gerade Düse erzielen. Der Vorteil der 4-Loch Ringdüse ist die Anordnung der Düsenaustrittsöffnungen. Durch die Positionierung in einem Winkel von 45° zu der Mittelsenkrechten ergeben sich NH_3 Austrittsvektoren mit axialer und radialer Komponente. Das bedeutet, der Gasmassen-

strom wird von der Rohrwand in Richtung der Rohrmitte dosiert. Diese Form der Dosierung in Verbindung mit dem verbauten Mischelement ermöglicht ein annähernd homogenes NH_3 -Abgasgemisch vor dem SCR Katalysator. Eine ähnliche geometrische Strahlführung besitzt die gerade Düse. Hier hat der NH_3 Austrittsvektor der beiden in Abgasströmungsrichtung gerichteten Auslassreihen ebenfalls eine axiale und radiale Komponente. Dadurch, dass NH_3 über den gesamten Durchmesser des Abgasrohres eindosiert wird, ist eine größtmögliche Unabhängigkeit gegenüber sich ändernden Abgasmassenströmen gewährleistet. In Konsequenz bieten die beiden letzten Düsengeometrien in Verbindung mit dem Mischelement eine gute Basis für eine homogene NH_3 Gleichverteilung, die sich in einem hohen Uniformity Index widerspiegelt.

Visualisierung am Strömungsprüfstand

In einer weiteren Instanz der Validierung der Untersuchungsergebnisse zur NH_3 Gleichverteilung werden am Strömungsprüfstand optische Vergleichsmessungen durchgeführt. Diese Form der Strömungsvisualisierung soll neben den Motorprüfstandmessungen und der CFD Simulation als weiteres Instrument für die Bewertung der Düsengeometrien dienen.

Hierzu wird mit Plexiglasrohren, in den Dimensionen des Abgasstrangs, eine Messstrecke am Strömungsprüfstand (vgl. Kapitel 4.2) aufgebaut und mit Messtechnik versehen. Für die Durchführung der Messungen werden aus sicherheitstechnischen Gründen Ersatzmedien verwendet. Als Äquivalent für das motorische Abgas wird Umgebungsluft genutzt und als NH_3 Ersatz wird reiner Stickstoff N_2 verwendet. An dieser Stelle werden somit folgende Annahmen getroffen: Die unterschiedlichen Dichten der verwendeten Gase zu den tatsächlichen Gasen werden hier vernachlässigt, da die Form der Auswertung hierdurch nicht nachteilig beeinflusst wird. Gleiches gilt für die Temperatur der Gase. Es erfolgt keine Konditionierung, das heißt, die Gase haben Raumtemperatur und sind nicht auf die korrelierende Temperatur, die dem nachgestellten Motorbetriebspunkt entspräche, aufgeheizt.

Um das unsichtbare N_2 für die Zumischung in die sichtbare Luft sichtbar zu machen wird mittels eines Palas Verdampfer, durch den das N_2 vor der Dosierung geleitet wird, dieses mit Kaliumchlorid KCl angereichert. Die KCl Partikel haben eine Größe von 5 nm bis 15 μm und der durch sie zusätzlich aufgeprägte Impuls bei der Dosierung wird aufgrund der geringen Eigenmasse vernachlässigt. Das so gebildete Aerosol kann mit dem bloßen Auge wahrgenommen werden.

Die Zuführung des N_2 erfolgt bei konstantem Druck von 2 bar direkt aus einer Gasflasche mit nachgeschaltetem Druckregler. Entsprechend den auftretenden Abgasmassenströmen am Prüfstand für den Dieselmotor beim Durchfahren von hochdynamischen Zyklen wird der Luftmassenstrom definiert. Somit ergeben sich für die Niedriglast 50 kg/h, die Teillast 150 kg/h und die Volllast 300 kg/h. Stellvertretend für alle Düsen werden die observierten Strömungseigenschaften der L-Profil Düse eingehender diskutiert. Bei geringen Luftmassenströmen kommt es zu einer guten homogenen Gleichverteilung des dosierten Gases mit dem Luftstrom. Die aufgeprägte Austrittsrichtung mit dem radialen Geschwindigkeitsvektor findet sich in den Stromlinien des Gases wieder. Diese verlaufen zu Beginn orthogonal zur Luftströmung von der Rohrmitte aus in Richtung der Rohrwand. Erst kurz vor dem Erreichen der Rohrwand wird die Stromlinie des dosierten Gases, entsprechend dem aufgeprägten Strömungsimpuls umgelenkt und von der Luftströmung mitgerissen. Diese fontänenartige Strahlbilder werden in ihrer Durchdringungstiefe von dem Luftmassenstrom bestimmt. Steigt dieser an, so nimmt die Güte der Gleichverteilung ab. Die homogene Gleichverteilung wird durch die Einschnürung zunehmend zu einer lokal verdichteten Verteilung (Abbildung 5-25). Hieraus leitet sich ab, dass ein hoher Austrittsimpuls des Reagenz bei hohen Luft-/Abgasmassenströmen erforderlich ist. Hier würden flüssige Reagenzmittel in Bezug auf die höhere Masse und somit auch die höher Massenträgheit der zerstäubten Tropfen im Vorteil sein. Alternativ könnte bei Verwendung von gasförmigen NH_3 die Austrittsgeschwindigkeit gesteigert werden. Mit der Randbedingung, dass der Öffnungsquerschnitt der Austrittsbohrungen sich nicht ändert würde eine Druckerhöhung eine Vergrößerung des Geschwindigkeitsvektors bedeuten und somit auch eine Impulserhöhung.

Als Conclusio verdeutlichen die durchgeführten Untersuchungen die Notwendigkeit bei einer gasförmigen Dosierung, dass das eingebrachte Reagenz bereits am Austritt aus dem Injektor über den Querschnitt verteilt sein sollte. Nur so ist eine vom Abgasmassenstrom unabhängige Verteilung ge-

währleistet. Für die untersuchten Geometrien erfüllen diese Bedingung am besten die Ring-Düse und die gerade Düse.

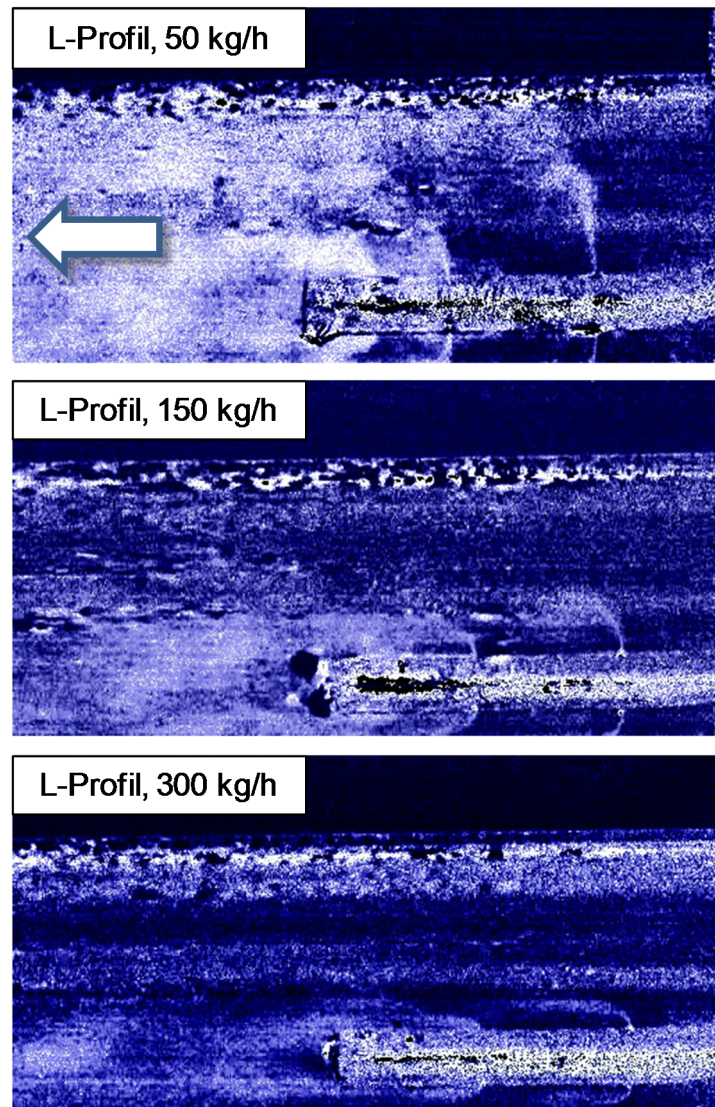


Abbildung 5-25: Visualisierung einer konstanten Gasdosierung in das Abgasrohr bei unterschiedlichen Abgasströmen

5.2.3 Ergebnis der Gleichverteilungsmessung

Für die Bewertung der Ergebnisse aus der Gleichverteilungsmessung wird für jede Düsengeometrie der Uniformity Index (UI) nach Formel (5-13) berechnet. Der Berechnungsansatz entstammt aus Wel-tens et al. [115]. Hierbei entspricht der Wert 1 dem Ideal einer absolut homogenen Gleichverteilung.

$$\text{Uniformity Index: } \gamma = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n \sqrt{(c_{NH3,i} - \bar{c}_{NH3})^2}}{2 * S_n * \bar{c}_{NH3}} \quad (5-13)$$

In Tabelle 5-5 sind die berechneten UI-Werte in einer gewichteten Darstellung zusammengefasst. Die Berechnung bestätigt die inhaltlichen Aussagen der graphischen Auswertung. Trotz der gewonnenen Erkenntnisse in Bezug auf den guten Uniformity Index der Ring-Düse, auch bei unterschiedlichen Mo-

torbetriebpunkten, wird in den weiteren Messreihen nur noch auf die gerade Düse zurückgegriffen. Diese hat ebenfalls über den gesamten Bereich, der vermessen wurde, eine gute Gleichverteilung erzielt. Hinzu kommt ein weiterer Vorteil dieser Geometrie, der in der Schlichtheit der Komplexität und der damit verbundenen einfachen und kostengünstigen Fertigung liegt.

Tabelle 5-5: Qualitativer Uniformity Index der einzelnen NH₃ Düsengeometrien

Düsengeometrie	4-Loch Ring	8-Loch Ring	Gerade	L-Profil
niedrige Last.	++	-	+	+
hohe Last	+	++	+	-

Variation der Düsenpositionierung

Ein großer Vorteil der gasförmigen NH₃ Dosierung ist der Entfall der Hydrolysereaktionen. Dies erlaubt es, bei der Gestaltung der Mischstrecke diese entsprechend kurz auszuführen. In der untersuchten Konfiguration wird der SCR Katalysator in seiner ursprünglichen Einbauposition belassen und stattdessen die Dosierstelle verlegt. Die neue Mischstrecke beträgt somit nur noch 260 mm. Des Weiteren kommt das originale Abgasrohr des Fahrzeuges zur Anwendung. Dieses besitzt kurz vor der Düsenposition ein gebogenes Rohrelement, das im Fahrzeug im Falle eines Unfalls als Sollknickstelle vorgesehen ist. Die generelle Position der Düse ist in der waagerechten Ebene zur Abgasrohrmitte. Der Grund hierfür ist der im Unterbodenbereich des Fahrzeugs verfügbare Bauraum. Dieser wäre für eine senkrechte Anordnung der Düse von oben nicht ausreichend und von unten müssten zusätzliche Schutzmaßnahmen für die NH₃ Leitungsführung getroffen werden, die wiederum die Bodenfreiheit des Fahrzeuges einschränken würden.

Mit den Ergebnissen für die gefahrenen transienten Testzyklen kann folgender Nachweis erbracht werden: Eine Verkürzung der Mischstrecke von 1060 mm auf 260 mm hat in der untersuchten Abgas-konfiguration bei gasförmiger NH₃ Dosierung keinen messbaren Einfluss auf die NO_x Konvertierungs-performance (Abbildung 5-26).

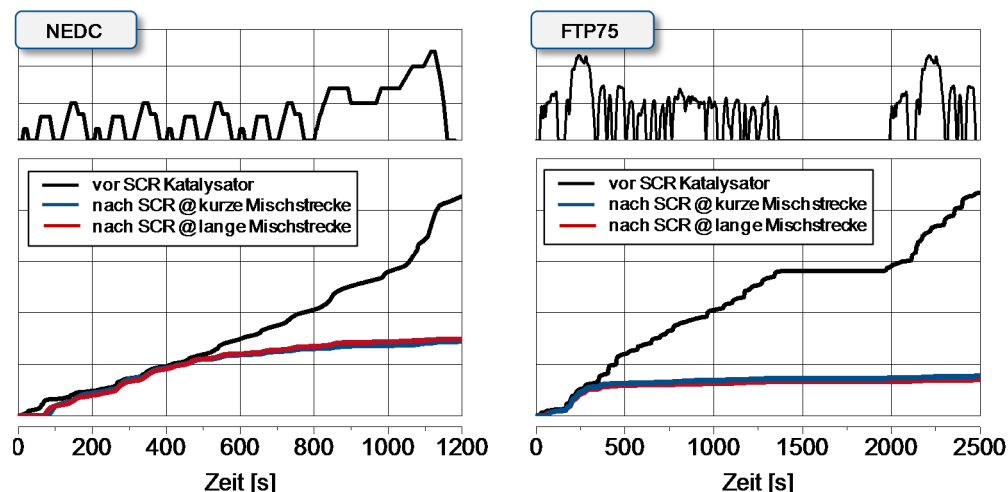


Abbildung 5-26: DeNO_x Performance bei Variation der Mischstreckenlänge [99]

Anschließend soll bei konstanter Distanz zum SCR Katalysator untersucht werden, ob es einen Einfluss auf die Gleichverteilung hat, in welcher Orientierung die Düse eingebaut ist. Insbesondere vor dem Hintergrund der speziellen Abgasführung bedingt durch das Crash-Element direkt vor der NH₃ Dosierstelle. Für die Untersuchung wird die Düse einmal von links und einmal von rechts montiert. Dies entspricht einer Drehung um 180° um die horizontale Achse bezogen auf die Strömungsrichtung des Abgasmassenstromes (Abbildung 5-27).

Der um ein vielfaches größere Massenstrom des Abgases hat eine große Auswirkung auf die sich einstellende Strömung des geringen NH_3 Massenstroms und somit auf die Gleichverteilung. Die am Motorprüfstand gemessenen Werte sind zur Veranschaulichung für beide getesteten Varianten in Abbildung 5-28 dargestellt.

Das Ergebnis zeigt einen großen Unterschied für beide Varianten. Der Einfluss des Motorbetriebspunktes und somit des Abgasmassenstromes kann hierbei vernachlässigt werden, denn beide Messungen liefern qualitativ das gleiche Bild. Im direkten Vergleich zwischen niedriger und hoher Last unterscheiden sich die Werte nur in den Amplituden der Messwerte. Vielmehr kommt es zu signifikanten Einflüssen für die unterschiedliche Orientierung der Düse.

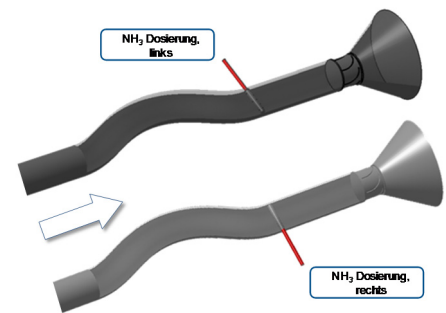


Abbildung 5-27: Orientierung der NH_3 Düse im Abgasstrang

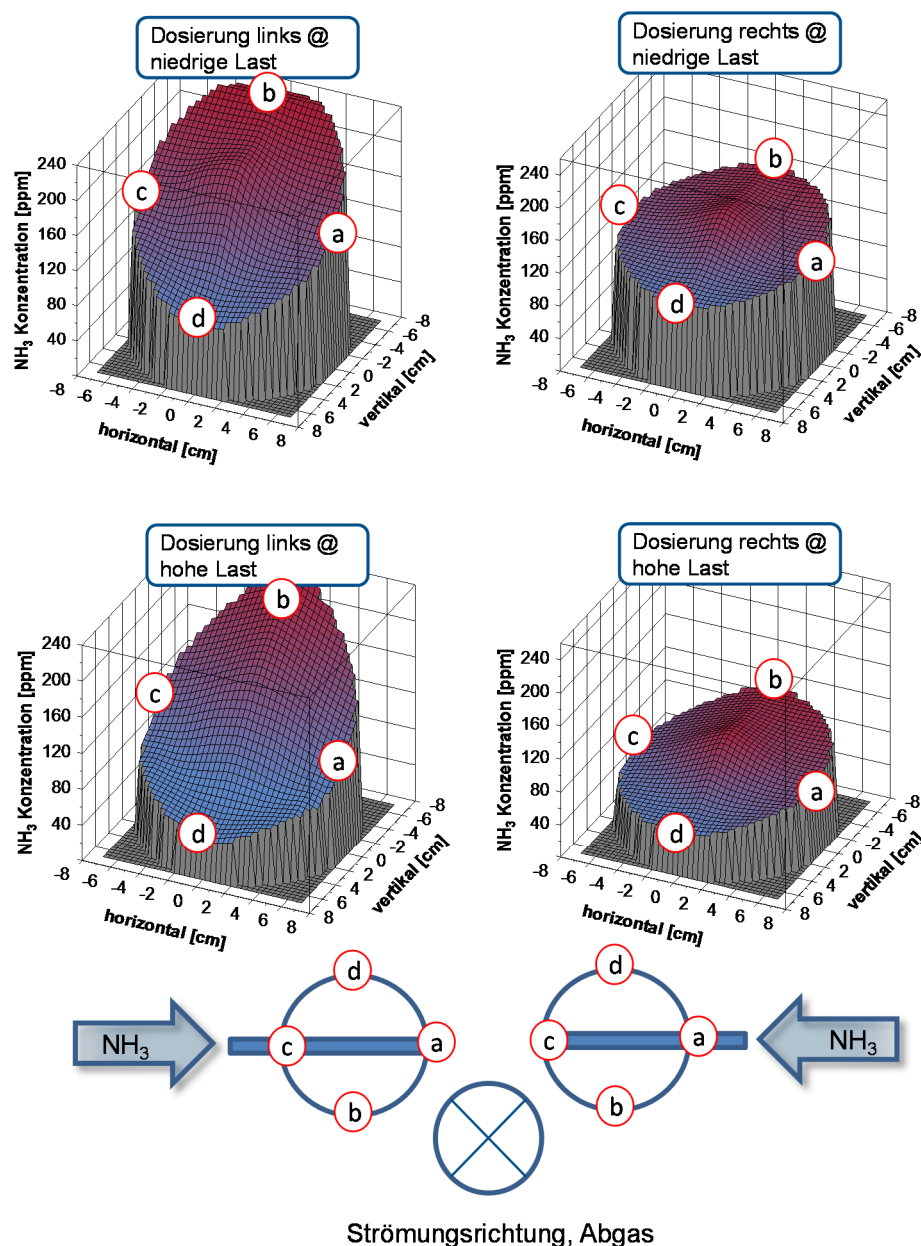


Abbildung 5-28: Einfluss der Einbauposition der NH_3 Düse auf die Gleichverteilung

Zur Plausibilitätsprüfung der Messergebnisse am Motorprüfstand wird zusätzlich eine CFD Simulation durchgeführt.

CFD Simulation

Die am Prüfstand gemessenen Ergebnisse zur NH_3 Gleichverteilung im Falle einer kurzen Mischstrecke zeigen eine hohe Abhängigkeit in Bezug auf die Einbauposition und die Orientierung der Düse. Basis für die Simulation sind die durch den Motorprüfstand vorgegebenen Randbedingungen, wie Abgasmassenstrom, NH_3 Massenstrom, Abgaszusammensetzung, Temperatur und Druck. Letztlich bestätigen die Ergebnisse der Simulation qualitativ die Ergebnisse vom Motorprüfstand (Abbildung 5-29).

Die Erklärung hierfür: Durch das Layout des Abgasstrangs, speziell durch das vorhandene Crash-Element stromaufwärts vor der eingebauten NH_3 Düse kommt es zu einer Beeinflussung der Abgasströmung. Dies hat zur Folge, dass die NH_3 Stromlinien in der linken Einbauposition eine größere Ablenkung erfahren als in der rechten Einbauposition. Des Weiteren wirkt sich zusätzlich der Umstand aus, dass über die Länge der Düse das NH_3 aus den Austrittsbohrungen nicht absolut gleichmäßig auströmt. Für die nachfolgende Beschreibung sei auf Abbildung 5-28 verwiesen. Mit der Dosierung von links kommt es zu einer NH_3 Ansammlung im Bereich der ersten Austrittsbohrungen (Position c) Dieser Effekt wird durch die Strömung des Abgasmassenstroms zusätzlich verstärkt. Der an der rechten Abgasrohrinnenwand anliegende Abgasmassenstrom drängt den NH_3 Massenstrom zusätzlich aus der Mitte heraus hin zur linken Abgasrohrinnenwand ab. In Konsequenz wird das Mischelement nicht koaxial beaufschlagt, sondern mit einer Desaxierung. Hierdurch wird der NH_3 Gaststrom in eine Rotationsbewegung versetzt, die nicht zu einer gleichmäßigen Verteilung führt, sondern zu einer lokalen NH_3 Verdichtung am Eintritt in den SCR Katalysator. Mit der Zuführung des NH_3 von rechts in die Düse wird das an den ersten Austrittsöffnungen (Position a) ausströmende NH_3 durch den Abgasmassenstrom in die Mitte des Abgasrohrs geleitet. Dadurch kann ein annähernd koaxiales Auftreffen auf das Mischelement gewährleistet werden. Anschließend wird dem NH_3 - und dem Abgasmassenstrom ein Drall induziert, der eine gleichmäßige Homogenisierung bewirkt.

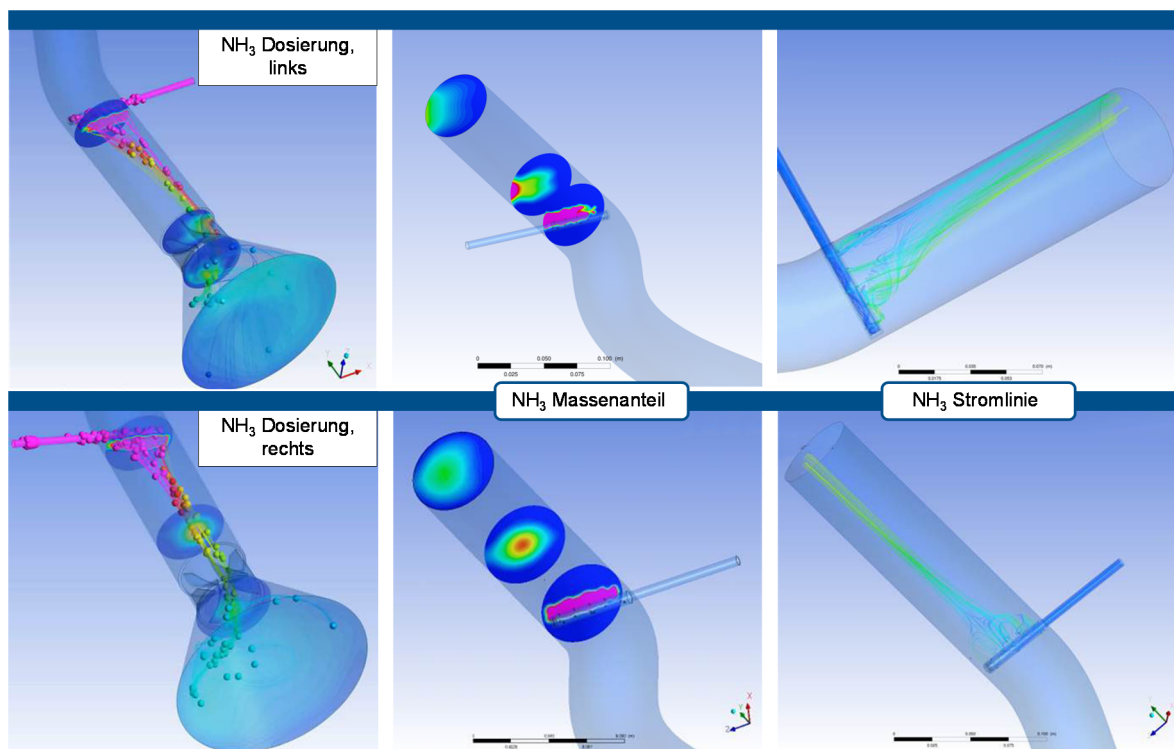


Abbildung 5-29: CFD Simulation zur NH_3 Gleichverteilung bei kurzer Mischstrecke und gerade Düse

Als Ergebnis liefert die CFD Simulation, dass es sehr wichtig ist, die Geometrie des gesamten Abgas- und Dosiersystems aufeinander abzustimmen, auch wenn die einzelnen Teile, wie die Düse oder der Mischer für sich als Individualbauteil optimiert sind. Insbesondere wenn die Abgasrohre waagrecht im

Unterboden des Fahrzeuges verbaut sind muss bei einer Reagenzdosierung in diesem Bereich der Dichteunterschied zwischen dem Abgas ($1,2939 \text{ kg/m}^3$) und dem NH_3 ($0,7714 \text{ kg/m}^3$) mit berücksichtigt werden. Der Effekt der Gravitation darf hierbei nicht vernachlässigt werden und es sind entsprechende Maßnahmen zu treffen die dies berücksichtigen. Aber trotz der hier identifizierten Eigenschaften kann auf Grundlage der Messergebnisse nachgewiesen werden, dass ein Systembetrieb mit gasförmigen NH_3 eine effiziente DeNO_x Performance auch mit einfachen Komponenten der Dosierung und Mischung realisierbar ist. Für den Anwendungsfall einer NH_3 Dosierung bei senkrechter Abgasführung wird auf Kapitel 5.5.1 verwiesen.

5.3 Entwicklung einer Dosierstrategie für den transienten Motorbetrieb

Die in den Kapiteln zuvor diskutierten Ergebnisse basieren auf dem stationären Motorbetrieb mit stationärer Reagenzdosierung. Für den Anwendungsfall des transienten Motorbetriebs bedarf es einer angepassten Dosierstrategie. Entsprechend der jeweiligen Messaufgaben kommen in der vorliegenden Arbeit zwei unterschiedliche Dosierstrategien für die Dosiermengenvorgabe während eines transienten Fahrzyklus zum Einsatz. Zum einen ist dies eine der einfachsten Formen der Dosierung, die vorgesteuerte $\alpha=1$ Dosierung. Entsprechend der Formel (5-7) für das Feedverhältnis ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\text{Vorsteuermenge NH}_3 \quad \dot{m}_{\text{NH}_3} = 0,489 * \dot{m}_{\text{NO}_x} * \alpha \quad (5-14)$$

$$\text{mit} \quad \frac{M_{\text{NH}_3}}{M_{\text{NO}_x}} = 0,489 ; \text{ bei NO}_2\text{:NO} = 30\text{:}70 \text{ gemäß ISO 16183}^4$$

$$\text{NO}_x \text{ Emission} \quad \dot{m}_{\text{NO}_x} = \frac{\rho_{\text{NO}_x}}{\rho_{\text{Abgas}}} * c_{\text{NO}_x} * \dot{m}_{\text{Abgas}}$$

ρ_{NO_x}	Dichte des Stickoxids 2,053 kg/m ³
ρ_{Abgas}	Dichte des Abgases beim Dieselmotor 1,2939 kg/m ³
c_{NO_x}	NO _x Konzentration im Abgas [ppm]

Die Größen der einzelnen Werte basieren auf den Angaben der ISO 16183. Im Gegensatz zu der Bestimmung der NO_x Emissionen bei einer Modalanalyse ist für das Dosiermodell keine Feuchtekorrektur erforderlich. Die Reagenzdosierung erfolgt auf Basis der tatsächlich vorhandenen NO_x Emissionen. Die Eingangsgrößen für diese Form der gesteuerten NH₃ Dosierung beschränken sich im Wesentlichen auf den Abgasmassenstrom und die NO_x Konzentration vor SCR Katalysator. Unabhängig der Dosiermengebestimmung ist für die Steuerung der Dosierfreigabe die Temperatur vor SCR Katalysator zu erfassen. Die Dosierfreigabe sollte erst nach dem Erreichen der Light-Off-Temperatur des SCR Katalysators erfolgen. Außerdem sollte in Abhängigkeit des zugeführten Reagenzmittels, gerade bei flüssigen, wie z.B. AdBlue®, genügend Wärmeenergie für die Verdampfung und anschließende Thermo- und Hydrolyse zur Verfügung stehen. Diese Variante der Dosierstrategie findet Anwendung in den durchgeführten Grundvermessungen der SCR Katalysatoren. Hierbei ist es wichtig, immer gleichbleibende Rahmenbedingungen für eine Vergleichbarkeit zu gewährleisten.

Mit Hinblick auf die Applikation einer auf DeNO_x Performance orientierten Dosierstrategie, in Bezug auf Maximierung der NO_x Konvertierung und Minimierung/Vermeidung des NH₃ Schlupfes, sind wesentlich umfangreichere Maßnahmen erforderlich.

Die entwickelte Dosierstrategie basiert auf einem eindimensionalen (1D) Katalysatormodell. Die Grundannahme hierbei ist, dass für die erfolgende selektive katalytische Reduktion eine heterogene Katalyse vorliegt. Dies bedeutet, dass die Reaktionspartner unterschiedliche Aggregatzustände besitzen. Der SCR Katalysator als Feststoff und die Edukte (NO_x, NH₃) als Gase. Die chemische Reaktion erfolgt nach dem Eley-Rideal-Mechanismus. Hierbei wird zunächst das Edukt A auf der Katalysatoroberfläche adsorbiert. Im Falle des SCR Katalysators ist dies das NH₃. Anschließend reagiert das adsorbierte NH₃ mit dem NO_x aus der Gasphase zum Produkt C. Schließlich desorbiert Produkt C und die Reaktion ist abgeschlossen.

⁴ ISO 16183 Measurement of gaseous emissions from raw exhaust gas and of particulate emissions using partial flow dilution systems under transient test conditions

Die getroffenen Annahmen setzen voraus, dass Reaktionsabläufe eines einzelnen Kanals repräsentativ für den gesamten Monolithen sind. Darüber hinaus wird das System als adiabat angesehen, da keine radialen Konzentrations-, Geschwindigkeits- und Temperaturgradienten am Katalysatoreintritt des Monolithen angenommen werden. Folgende Effekte im Katalysator, durch die An- und Durchströmung mit Abgas, werden hierdurch vernachlässigt [64]:

- Stoff- und Energietransport in der Gasphase durch Strömung, Konvektion, Diffusion und Wärmeleitung in axialer und radialer Richtung
- Transportprozesse aus der Gasphase in den Washcoat durch Porendiffusion und Wärmeübergang
- Adsorptions- und Diffusionsvorgänge
- Oberflächenreaktionen
- Wärmeleitung in axialer und radialer Richtung in der Monolithwand

Für eine detaillierte Beschreibung der Reaktionskinetik bedarf es der Kenntnis aller ablaufenden chemischen Reaktionen und der daraus resultierenden Reaktionsgeschwindigkeiten und Reaktionsenergien. Des Weiteren müsste mittels eines Temperaturmodells die axiale und radiale Wärmeleitung in der Monolithwand beschrieben werden, und für die Lösung der Erhaltungsgleichungen von Masse, Energie und Impuls eine Beschreibung des Stoff- und Energietransports im Katalysator vorliegen. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein alternativer Ansatz verfolgt. Der Grund hierfür ist, dass das Modell für eine Vielzahl von unterschiedlichen SCR und SCRF Katalysatoren zur Anwendung kommt. Hierbei sind die katalysatorspezifischen Kenngrößen, wie z.B. Geometriedaten, Porenstruktur, Aktivierungsenergie, Geschwindigkeitskoeffizienten, Washcoat usw. im Detail nicht immer bekannt. Daher wird auf die Entwicklung eines physikalischen Modells verzichtet und primär auf die Entwicklung eines kennfeldbasiertes Modells gesetzt. Eine Übersicht zur Struktur des Modellansatzes ist in Abbildung 5-30 gegeben. Das Modell zur Dosierstrategie ist in Matlab-Simulink programmiert.

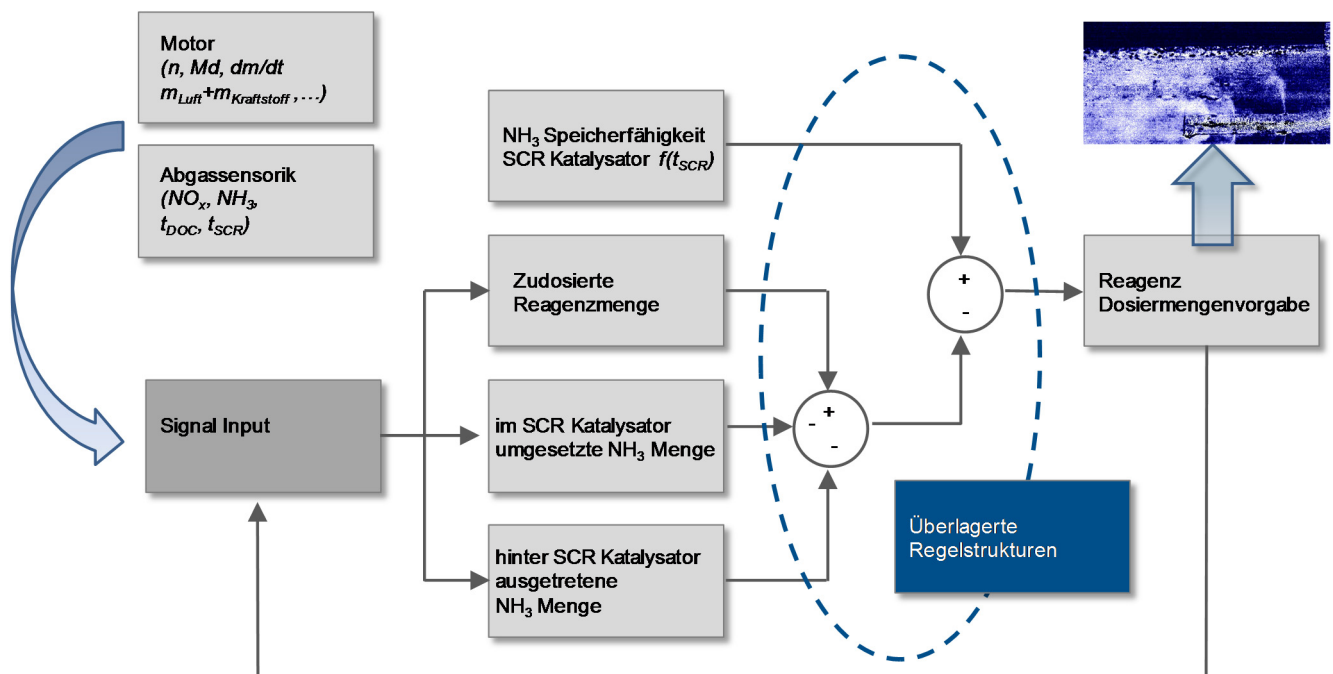


Abbildung 5-30: Übersicht zur Struktur der Dosiermengenregelung

Den methodischen Ansatz bildet die Aufstellung einer globalen Bilanzgleichung. Ausgehend von der zugeführten Menge an Reagenz, dem durchgebrochenen NH_3 und dem für die Umsetzung des NO_x benötigten NH_3 wird die eingespeicherte Menge an NH_3 im SCR Katalysator bestimmt. Diese Form der Modellbildung erfordert eine Vielzahl an Eingangssignalen. So ist bspw. von den Motorgrößen der ECU

der Luft- und Kraftstoffmassenstrom zur Bestimmung der Emissionen und der Raumgeschwindigkeit im Katalysator erforderlich. Zusätzlich wird mittels der eingesetzten Abgassensorik die NO_x Konzentration vor und hinter SCR Katalysator sowie die NH_3 Konzentration hinter SCR Katalysator bestimmt. Die Messgenauigkeit der Sensorik hat dabei einen entscheidenden Einfluss auf die Güte des Modells.

5.3.1 Anforderungen an die Sensorik für NO_x und NH_3 Messung

Die entwickelte Dosierstrategie basiert auf Eingangsgrößen, die ebenfalls in einem mobilen Anwendungsfall, z.B. in einem Fahrzeug, zur Verfügung gestellt werden können. Es wird daher bewusst auf Signale aus der Prüfstandmesstechnik als Eingangsgrößen verzichtet. Diese werden jedoch zu Zwecken der Validierung ebenfalls erfasst. Die verwendeten NO_x Sensoren entstammen aus der Serienfertigung und werden bereits bei Fahrzeugen mit SCR Technologie von diversen OEMs eingesetzt. Der NH_3 Sensor hingegen ist ein Vorserienmodell, da zum Zeitpunkt der durchgeführten Messungen der Hersteller kein Serienprodukt angeboten hat. Der NH_3 Sensor ist jedoch für die durchgeführte Applikation einer Closed-Loop-Regelung erforderlich. Beide Sensorarten weisen unterschiedliche Querempfindlichkeiten auf, so dass im ersten Schritt eine Identifikation der messtechnischen Eigenschaften der jeweiligen Sensoren durchgeführt wird, die stationäre und transiente Untersuchungen umfasst.

Das Signal des NO_x Sensors dient primär der Erfassung der vorhandenen NO_x Konzentration vor und nach dem SCR Katalysator. Ein Aspekt der die Messgenauigkeit betrifft ist die NH_3 Querempfindlichkeit. Dieser Punkt ist sowohl bei diesel- als auch bei ottomotorischen Anwendungen für SCR Systeme relevant. Wobei nur beim Ottomotor der NO_x Sensor mit NH_3 auch vor dem SCR Katalysator beaufschlagt wird, wenn er hinter dem TWC verbaut ist. Die Existenz von NH_3 im Abgas hat zur Folge, dass es zu Messabweichungen in Folge von Querempfindlichkeiten kommt. Der erfasste NO_x Konzentrationswert liegt über dem tatsächlich vorhandenen Wert. In erster Näherung kann die folgende Annahme getroffen werden: bei geringen NH_3 Konzentrationen (< 20 ppm) ist der Anstieg des NO_x Wertes äquivalent zu der vorhandenen NH_3 Konzentration. Bei größeren NH_3 Konzentrationen entspricht der Anstieg im NO_x Sensor Signal dem zweifachen der NH_3 Konzentration (Abbildung 5-31, links). Hier ist eine entsprechende Korrektur erforderlich, um die Querempfindlichkeit heraus zu kalibrieren. Andernfalls käme es zu einem instabilen Systemzustand. Bei einer vom Feedverhältnis geregelten Dosierstrategie käme es zu dem Effekt der Selbstverstärkung und die Einspritzmenge würde sich kontinuierlich erhöhen.

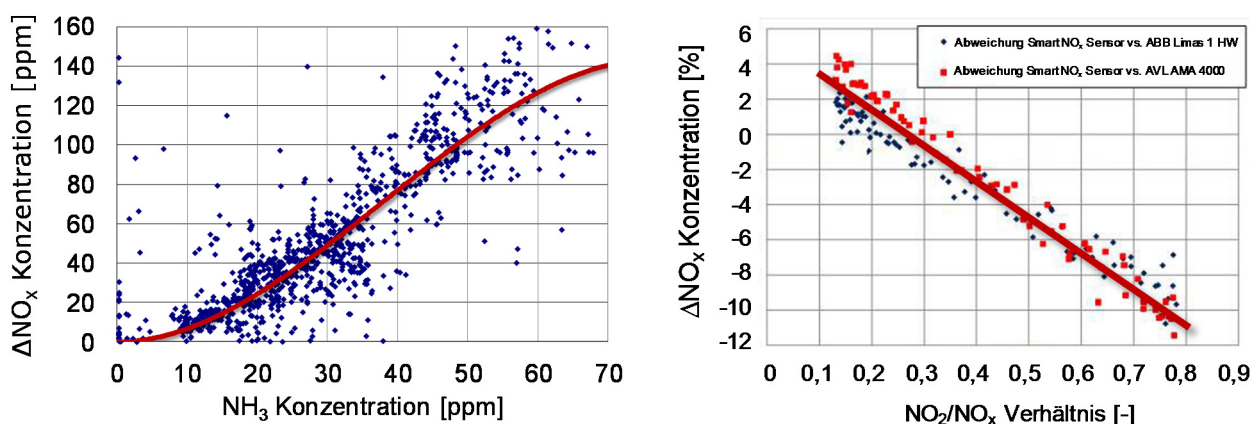


Abbildung 5-31: Querempfindlichkeit des NO_x Sensors von der NH_3 Konzentration und dem NO_2/NO_x Verhältnis

Die NO_x Sensoren aus der Generation, die für diese Arbeit verwendet werden, haben die Eigenschaft auf das im Abgas vorliegende NO_2/NO_x Verhältnis zu reagieren (Abbildung 5-31, rechts). In vergleichenden Messungen mit Verwendung von NO_x Sensoren und NO_x Analysatoren kann gezeigt werden, dass bei niedrigem NO_2 Anteil der Messwert des NO_x Sensors einen um bis zu 4 % erhöhten NO_x Kon-

zentrationenwert ausgibt. Hingegen bei sehr hohen NO_2 Anteilen sinkt der ausgegebene NO_x Konzentrationswert um über 10 % unter den tatsächlich vorhandenen Wert ab. Die genauesten Messergebnisse liegen bei einem NH_3 freien Abgas mit einer NO_2/NO_x Verhältnis von 0,3 vor.

Die Kenntnis über das aktuell vorliegende NO_2/NO_x Verhältnis ist neben der Korrektur des NO_x Sensorwertes auch für die Bilanzierungsrechnung notwendig. Bedingt durch die unterschiedlichen Molmassen für NO und NO_2 muss dies bei der Emissionsberechnung in dem Dosiermodell berücksichtigt werden. Die Grundlage hierzu sind Voruntersuchungen zu der NO_2 Bildung des DOC über der Temperatur. Die in Abbildung 5-32 dargestellten Verläufe für das berechnete und gemessene NO_2/NO_x Verhältnis zeigen qualitativ eine gute Übereinstimmung. Der berechnete Verlauf erscheint geglättet. Als Ursache hierfür kann die hohe thermische Masse und die damit verbundene Temperaturträgheit des DOC angesehen werden. Des Weiteren kommt es zu Superpositionseffekten, da sich das NO_2/NO_x Verhältnis der Motorrohmissionen betriebspunktabhängig ändert (vgl. Kapitel 2.1.4).

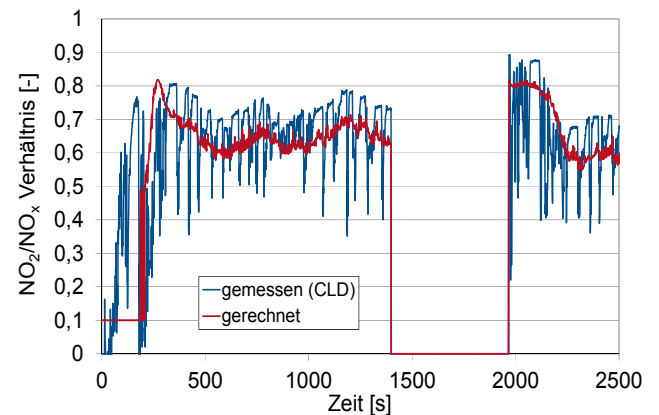


Abbildung 5-32: Vergleich des gerechneten NO_2/NO_x Verhältnisses zu dem gemessenen für den FTP75

Bei der Verwendung der NO_x Sensoren in Verbindung mit einem Dieselmotor kann eine gute Korrelation zwischen Analysator und Sensorsignal nachgewiesen werden. Jedoch in Verbindung mit einem Mager-Ottomotor mit einer Betriebsartenumschaltung von Mager auf Fett zum Betrieb eines Passiv SCR Systems (siehe Kapitel 6.3) kommt es zu Einschränkungen. Das kurzzeitige Durchfahren des NO_x Konzentrationpeaks bei $\lambda \approx 1,1$ verursacht Stickoxidkonzentrationen, die oberhalb des Messbereiches für aktuelle NO_x Sensoren liegen (Abbildung 5-33, links).

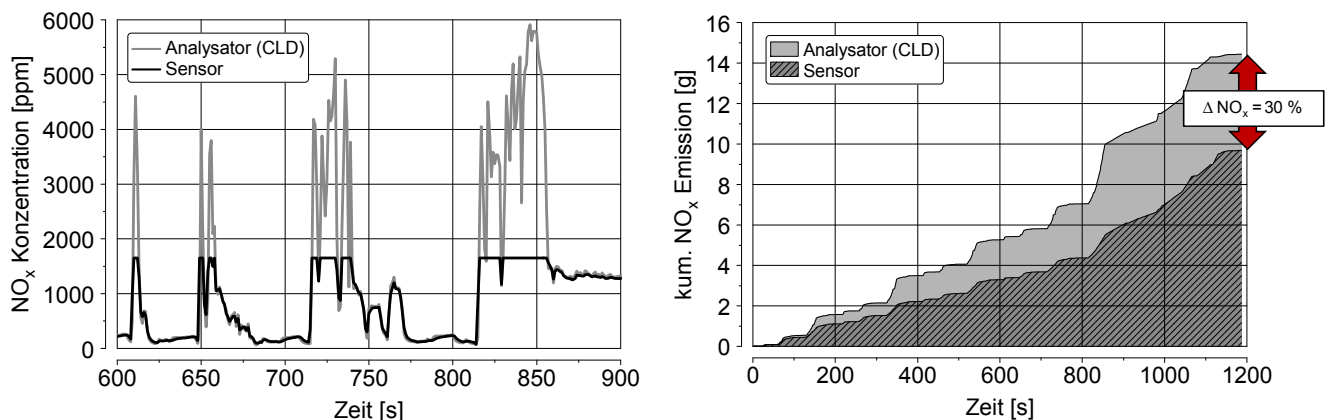


Abbildung 5-33: NO_x Konzentration und Emission im transienten Zyklus, Vergleich von Sensor zu Analysator

Bei den am Motorprüfstand durchgeführten Messungen für den Mager-Ottomotor mit Betriebsartenumschaltung ergibt sich eine Differenz der akkumulierten NO_x Emissionen im Bereich von 30 % für einen NEDC. Auf den Einsatz von NO_x Sensoren mit höherem Messbereich wurde bewusst verzichtet, da von den jeweiligen Herstellern keine Angaben in Bezug auf die Messgenauigkeit gemacht werden.

Der **NH_3 Sensor** dient primär der Erfassung des NH_3 Schlupfes hinter dem SCR Katalysator. Typische Einbaupositionen sind daher hinter dem SCR Katalysator zur Erfassung des Gesamtschlupfes für die Speicherbilanzierung. Alternativ kann der Einbau, bei einem SCR Katalysator bestehend aus zwei Bricks, zwischen den beiden Bricks erfolgen. Der Vorteil ist in diesem Fall die frühzeitige Erfassung von

auf tretendem NH_3 Durchbruch bereits nach dem ersten Brick. Dies bietet die Möglichkeit in der Regelstrategie schneller auf diese Situation zu reagieren. Für die Gesamtbilanzierung besteht aber nach wie vor der Bedarf an einem zusätzlichen NH_3 Sensor hinter dem zweiten Brick. Für die Beurteilung, wie sich Systemlatenzzeiten in der Erfassung eines NH_3 Schlupfes bei transients NH_3 Dosierung auswirken, wird nachfolgende Untersuchung durchgeführt.

Hierzu wird ein SCR Katalysator bei stationärem Motorbetrieb mit einer konstanten Reagenzdosier rate bis an seine NH_3 Sättigungsgrenze, bei der sich einstellenden Katalysatortemperatur, vorbeladen. Anschließend werden mit einem gesteuerten Spiegel-Chirp-Signal die Frequenz und die Menge der Reagenzdosier rate (das Feedverhältnis) dynamisch variiert (Abbildung 5-34). Aus dem resultierenden NH_3 Sensorsignal lassen sich die Latenzzeiten der Systemantwort für das Gesamtsystem ermitteln. Diese sind von mehreren Parametern abhängig. So hat bspw. die Geometrie und die Beschichtung des SCR Katalysators einen Einfluss, aber auch der Aufbau des NH_3 Sensors selber. Hier zeigen sich bspw. Unterschiede im dynamischen Ansprechverhalten bei unterschiedlichen Formen der Schutzummantelung für die Gaszuführung des Sensors. Zusätzlich hat der Motorbetriebspunkt einen großen Einfluss. Letztlich ist dieses Systemverständnis für die Applikation von prädikativen Maßnahmen bei der Auslegung der Dosierstrategie notwendig, um einen NH_3 Durchbruch vermeiden zu können.

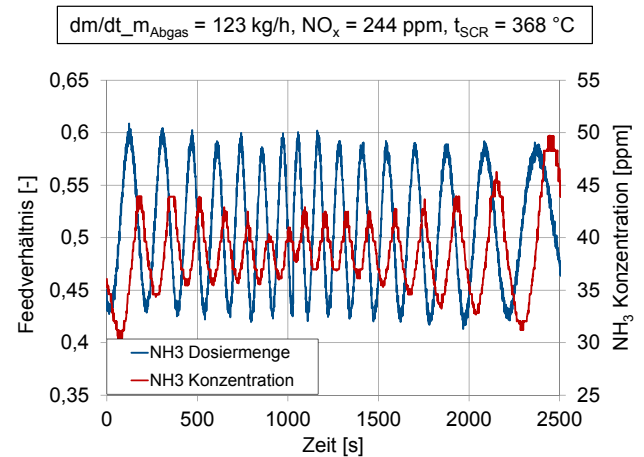


Abbildung 5-34: NH_3 Signalverlauf im Chirptest

Aktuelle NH_3 Sensoren unterliegen ebenfalls, wie NO_x Sensoren, der Anfälligkeit von Querempfindlichkeiten. Besonders auf das Vorhandensein von unverbrannten Kohlenwasserstoffen (HC) im Abgas reagieren die Sensoren mit der Ausgabe eines erhöhten NH_3 Wertes (Abbildung 5-35).

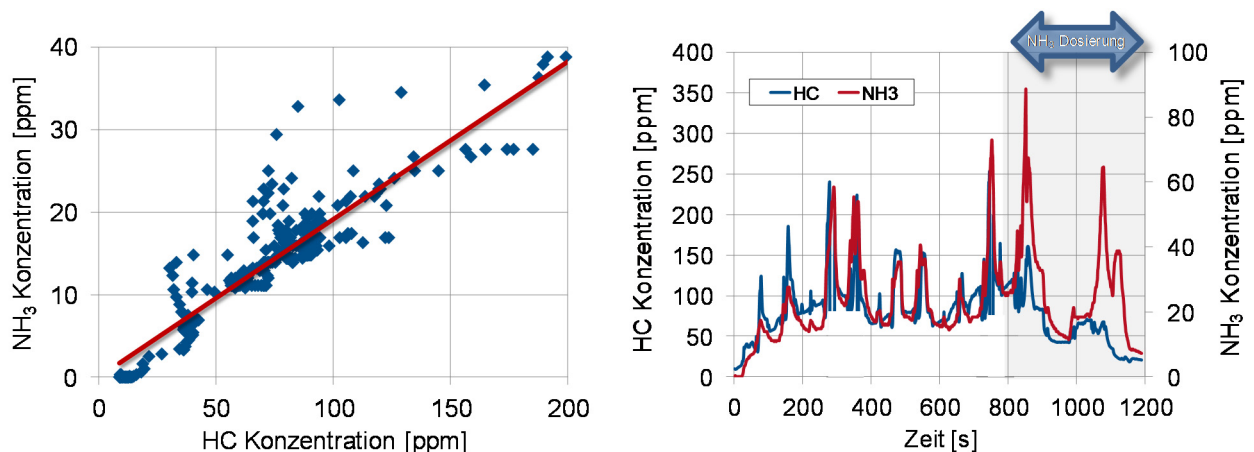


Abbildung 5-35: Querempfindlichkeit des NH_3 Sensors gegenüber HC

Auswirkungen hat dies sowohl beim Diesel- als auch beim Ottomotor nach dem Kaltstart. Solange der DOC bzw. TWC noch nicht seine Light-Off-Temperatur erreicht hat, werden die emittierten HC von dem NH_3 Sensor fälschlicherweise als NH_3 erfasst. Wie in Abbildung 5-35 dargestellt, wird so hinter einem unbeladenen SCR Katalysator selbst in der Phase ohne Reagenzzufuhr erhöhte NH_3 Konzentrationen erfasst. Das gemessene Verhältnis lässt sich genähert mit $5 \text{ ppm HC} \cong 1 \text{ ppm NH}_3$ ausdrücken. Diese Form der Artefakte haben ebenfalls negative Auswirkungen auf eine Bilanzierung des Speicherzustands im SCR Katalysator.

Für den Betrieb eines NH_3 Sensors ist eine sauerstoffhaltige (überstöchiometrische) Umgebung erforderlich. Das Abgas des Dieselmotors erfüllt diese Bedingung, ebenso der Mager-Ottomotor. Dennoch ergeben sich beim Betrieb eines Passiv SCR Systems am Ottomotor zwei bedingte Nachteile. Zum einen erfolgt die Bildung von NH_3 in der Fettphase und somit unter Sauerstoffmangel. Eine Erfassung des gebildeten NH_3 ist somit ohne weiteres nicht möglich. Zum anderen in den Kennfeldbereichen des Ottomotors in denen keine Abmagerung erfolgt. Beispielsweise im stöchiometrischen Betrieb der erhöhten Teillast oder im zum Teil unterstöchiometrischen Betrieb der Vollast zum Bauteilschutz. Die in diesen Betriebszuständen auftretenden Temperaturen des SCR Katalysators führen zu einer Desorption des eingespeicherten NH_3 und somit zu einem NH_3 Schlupf, der nicht durch den NH_3 Sensor erfasst werden kann. Dieser benötigt eine Mindest- O_2 -Konzentration im Abgas. Für den untersuchten Fall kann diese mit ca. 2 Vol-% angegeben werden (Abbildung 5-36). Im Magerbetrieb führt der geringe Anteil an NH_3 im Abgas zu einem kleineren Partialdruck, vor allem im Vergleich mit dem von O_2 . Dies hat gemäß Formel (5-15) zur Folge, dass der EMF Wert positiv wird und bedingt durch das Messprinzip aktueller NH_3 Sensoren eine Messung der NH_3 Konzentration im sauerstoffarmen Abgas nicht möglich ist.

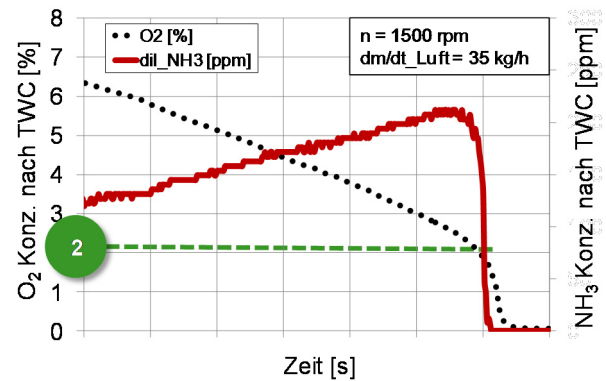


Abbildung 5-36: O_2 Bedarf für NH_3 Sensor

$$\text{EMF} \approx \frac{kT}{3e} \ln(p_{\text{NH}_3}) - \frac{kT}{4e} \ln(p_{\text{O}_2}) - \frac{kT}{2e} \ln(p_{\text{H}_2\text{O}}) \quad (5-15)$$

Mager: $p_{\text{NH}_3} \ll p_{\text{O}_2} \rightarrow$ negatives EMF

Fett: $p_{\text{NH}_3} \geq p_{\text{O}_2} \rightarrow$ positives EMF (kein Signal)

Für den Einsatz am Motorprüfstand ist das Abgassystem um eine Sekundärluftzufuhr erweitert. Diese führt nach TWC und vor SCR Katalysator eine definierte Luftmasse und somit Sauerstoff dem Abgas zu, sodass eine Erfassung des NH_3 Sensorwertes parallel zu dem Analysator möglich ist. Im Falle eines Passiv SCR Systems mit Sekundärluftzufuhr für den Betrieb eines NH_3 Sensors in allen Motorbetriebszuständen, ist darauf zu achten, dass es zur Abkühlung des SCR Katalysators und somit zu einer Form der Systemvertrimmung durch die zugeführte Sekundärluft kommt – insbesondere bei niedrigen Motorlasten.

5.3.2 Methodischer Applikationsansatz der Dosierstrategie

Bedingt durch die häufig wechselnden Randbedingungen, wie z.B. die Katalysatoren, das Dosiersystem, das Reagenzmedium aber auch das Verbrennungskonzept (Diesel-/Ottoabgas) wird auf die Applikation einer jeweils systemspezifischen Dosierstrategie verzichtet. Vielmehr gilt es einen methodischen Ansatz zu entwickeln, der es erlaubt die Dosierstrategie auf die jeweilige Prüfstandkonfiguration in kürzester Zeit abzustimmen. In Folge dessen kommen überlagerte Regelstrukturen zum Einsatz. Die in der Kaskadierung der Regelstruktur berücksichtigten Parameter sind nachfolgend beschrieben.

Temperaturanpassung

Entsprechend den Eigenschaften einer gasförmigen NH_3 - und einer flüssigen AdBlue® Dosierung ist die Dosierstrategie unterschiedlich ausgelegt. Die Dosierfreigabe erfolgt in beiden Fällen in Abhängigkeit der SCR Katalysatortemperatur. Aus Messungen ist bekannt, dass unter 140°C nahezu keine SCR Aktivität stattfindet und somit die NO_x Reduktion stark eingeschränkt ist. Zur Nutzung der erhöhten NH_3 Speicherfähigkeit im Niedertemperaturbereich wird dennoch mit der gasförmigen NH_3 Dosierung bereits ab 120°C begonnen. Die Dosierung erfolgt im Verhältnis zur Katalysatortemperatur. Das bedeutet, dass bei einer Temperatur von 120°C der Verhältnissfaktor den Wert 0 hat und linear auf 1 ansteigt. Der Wert von 1 wird bei einer SCR Katalysatortemperatur von 200°C freigegeben (Abbildung 5-37). Abweichend hierzu erfolgt bei flüssiger AdBlue® Dosierung die Dosierfreigabe erst ab 150°C . Dies ist begründet in der Notwendigkeit der vollständigen Verdampfung des Reagenz und der sich anschließenden Hydro- und Thermolysereaktion innerhalb der Mischstrecke vor dem SCR Katalysator. Der lineare Anstieg des Verhältnissfaktors für die Dosiermenge gleicht dem zuvor beschriebenen.

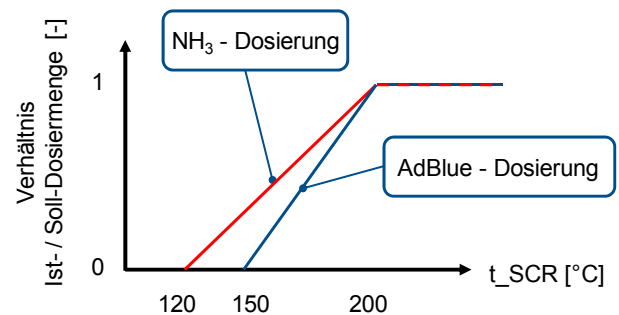


Abbildung 5-37: Dosierstrategie: SCR Temperatur & Dosierverhältnis

NH_3 Speicherlimitierung

Die begrenzte NH_3 Speicherfähigkeit der SCR und SCRF Katalysatoren erfordert eine weitere Anpassung der Dosierstrategie für das Reagenz. In Abbildung 5-38 beschreibt der Verlauf der absoluten NH_3 Speicherfähigkeit die maximal mögliche Aufnahme an NH_3 ohne einen NH_3 Durchbruch. Diese ist mit steigender SCR Katalysatortemperatur abnehmend. Im Niedertemperaturbereich wird eine maximale Obergrenze der NH_3 Speicherfähigkeit definiert. Das Maximum orientiert sich an dem Wert der NH_3 Speicherfähigkeit, bei der die volle Dosierfreigabe (Verhältnissfaktor 1) erfolgt. Die relative Limitierung ist so gewählt, dass selbst bei einer schnellen Erwärmung des SCR Katalysators, einerseits gewollt durch Einsatz einer Heat-Up Strategie oder andererseits einem Voll-last Fahrprofil des Fahrers geschuldet, ein NH_3 Schlupf vermieden wird. Hierzu ist das relative NH_3 Speicherlimit stets geringer als das absolute. Für den transienten Motorbetrieb ist im mittleren und oberen Temperaturbereich des SCR Katalysators eine Pufferzone vorgesehen. Diese wird durch einen Korrekturfaktor definiert, um einen Sicherheitsabstand zur NH_3 Schlupfgrenze zu wahren.

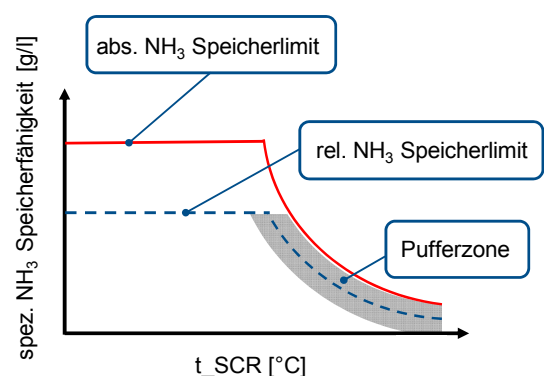


Abbildung 5-38: Dosierstrategie: NH_3 Speicherlimitierung

NO_x Konvertierungslimitierung

In Abhängigkeit der aktuell gemessenen NO_x Konvertierungseffizienz über den SCR Katalysator erfolgt eine zusätzliche Anpassung der dosierten Reagenzmenge im transienten Motorbetrieb, bspw.

während eines Testzyklus. Mit steigender Effizienz wird die Dosiermenge reduziert (Abbildung 5-39). Die Begründung hierfür ist: Die eigentliche NO_x Konvertierung erfolgt mittels dem im SCR Katalysator zwischengespeicherten NH_3 . Damit der SCR Katalysator NO_x Konvertierungsraten $\gg 90\%$ erzielen kann, müssen unter anderem die dafür erforderlichen hohen Temperaturen herrschen. Das wiederum bedeutet, dass die NH_3 Speicherfähigkeit ein geringes Niveau hat. Die Dosierstrategie sieht daher vor, primär das desorbierte NH_3 für die NO_x Konvertierung zu nutzen, um so die Menge an gespeichertem NH_3 innerhalb der Pufferzone (vgl. Abbildung 5-38) zu verringern. Dies soll dazu beitragen, dass bei weiter steigenden Temperaturen durch eine Forcierung des Fahrprofils hinter dem SCR Katalysator NH_3 Schlupf vermieden wird.

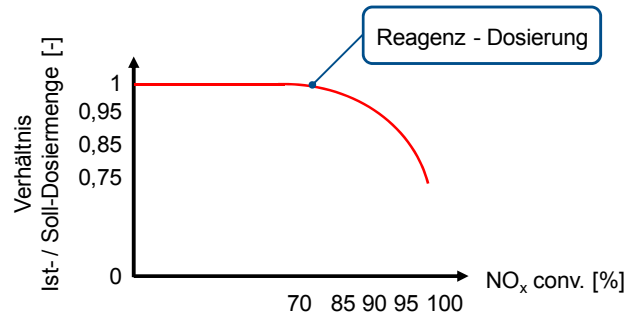


Abbildung 5-39: Dosierstrategie: Dosiermengenanpassung in Abhängigkeit der NO_x Konvertierungseffizienz

NH_3 Schlupfkompensation

Im Falle eines NH_3 Schlupfes ist die Dosierstrategie so ausgelegt, dass es zu einer Minderung der zugeführten Reagenzmenge kommt. Hierzu wird ab einer gemessenen NH_3 Konzentration von 5 ppm hinter SCR Katalysator der Verhältnissfaktor der Dosiermenge entsprechend dem regressivem Verlauf in Abbildung 5-40 von 1 auf 0 bei 100 ppm NH_3 reduziert. Der NH_3 Durchbruch kann durch unterschiedliche Ursachen hervorgerufen werden, wie z.B.: Überdosierung des Reagenz, rasche Erwärmung des SCR Katalysators und dadurch Übersättigung, inhomogene Gleichverteilung des Reagenz vor SCR Katalysator dadurch Bildung eines oder mehrerer lokaler NH_3 Hotspots, Alterung des SCR Katalysators mit zunehmender ungleichmäßiger Deaktivierung der katalytischen Zonen zur NH_3 Speicherung. Die Detektion von NH_3 erfolgt über einen NH_3 Sensor.

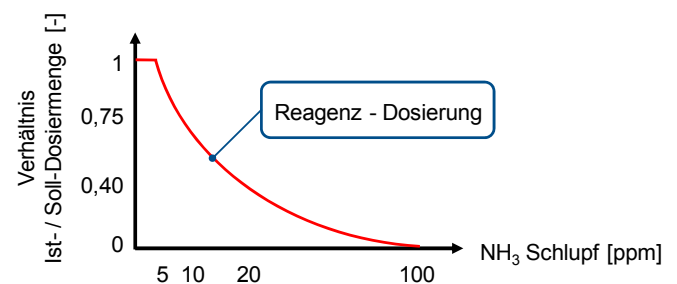


Abbildung 5-40: Dosierstrategie: Dosiermengenanpassung in Abhängigkeit des NH_3 Schlupfes

Gradientengesteuerte Dosierung

Neben den Funktionen zur Minderung der Dosiermenge ist zusätzlich eine Funktion zur Dosiermengenanhebung vorgesehen. Hierbei wird zur Bewertung der Dynamik des Fahrprofils im transientem Motorbetrieb der Gradient des Abgasmassenstromes als Kriterium genutzt. Als Einschränkung gilt, dass nur der positive Gradient, also während einer Beschleunigungsphase, berücksichtigt wird. Wenn sich die Differenz zwischen zwei aufeinander erfassten Werten (bei 1 Hz) des Abgasmassenstroms um mehr als 20 kg/h voneinander unterscheidet wird abweichend von der berechneten Sollwertvorgabe eine Anpassung vorgenommen. Der Verhältnissfaktor der Dosiermenge wird dabei bis zu einem Wert von maximal 2 linear erhöht, wenn ein Gradient von 100 kg/h erreicht wird. Der Abgasmassenstrom wird als Summenwert der angesaugten Luftmasse und des eingespritzten Kraftstoffes berechnet.

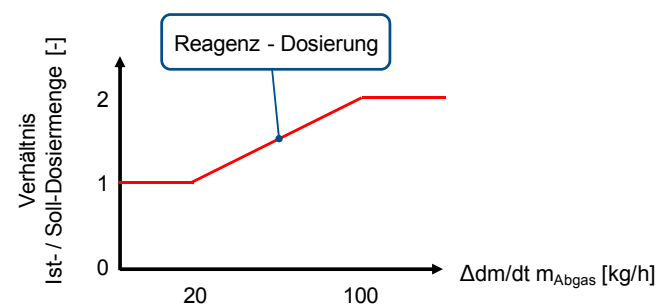


Abbildung 5-41: Dosierstrategie: Dosiermengenanpassung in Abhängigkeit der Fahrdynamik

Betriebsgrenzen: Temperatur vs. Raumgeschwindigkeit

Die Effizienz der NO_x Reduzierung wird neben den spezifischen Eigenschaften des SCR Katalysators durch zwei Größen des Abgasmassenstromes bestimmt. Dies ist zum einen die Wärmeenergie im Abgas und resultierend hieraus die Temperatur im SCR Katalysator und zum andern die Raumgeschwindigkeit im Katalysator. Die Raumgeschwindigkeit beschreibt den Quotienten aus Abgasvolumenstrom zu Katalysatorvolumen. Die Einheit ist h⁻¹.

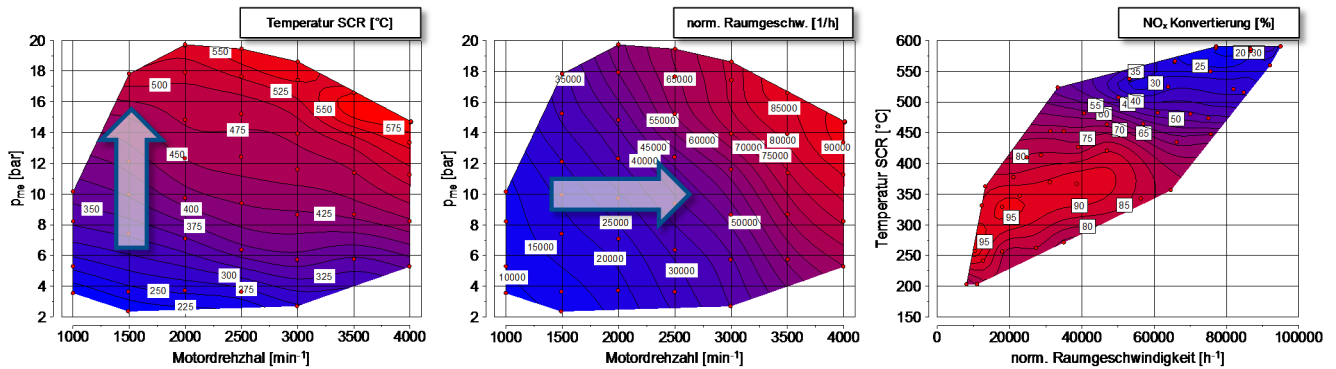


Abbildung 5-42: NO_x Konvertierung in Abhängigkeit der SCR Katalysatortemperatur und -raumgeschwindigkeit

Aus den Darstellungen in Abbildung 5-42 lassen sich folgende Zusammenhänge ableiten:

- Katalysatortemperatur $t_{SCR} = f(p_{me})$
- Raumgeschwindigkeit $RG = f(n_{Motor})$
- NO_x Konvertierung $\eta_{NOx} = f(p_{me}, n_{Motor})$

Hieraus ergeben sich die Betriebsgrenzen für ein Harnstoff/Ammoniak SCR System. Für eine effektive NO_x Konvertierung sind Katalysatortemperaturen von 200-450 °C und Raumgeschwindigkeiten von 10000-50000 h⁻¹ optimal. Diese Größen repräsentieren einen Motorbetrieb im Bereich der Niedrig- bis hin zur Teillast. In der Volllast kann ein SCR System nicht mehr effektiv betrieben werden. Bei Abgastemperaturen oberhalb von 400 °C kommt es zu einer Abnahme der Selektivität. Dies bedeutet, dass es in Verbindung mit kupferhaltigen Katalysatoren sogar zu Oxidationsreaktionen kommen kann [102]. Das dosierte NH₃ reagiert nicht mehr ausschließlich mit dem NO_x unter der Bildung von Wasser und Stickstoff, sondern es kommt zu einer Reaktion mit dem Sauerstoff im Abgas und so zu einer zusätzlichen NO_x Bildung. In dem Dosiermodell wird dies durch eine entsprechende Applikation der Dosierfreigabe für den Hochtemperaturbereich berücksichtigt.

5.4 Untersuchung zur flüssigen AdBlue® und gasförmigen NH₃ Reagenzdosierung

Nach der Identifikation und Beschreibung der einzelnen Systemkomponenten wird ein Vergleich der DeNO_x Performance zwischen einem flüssigen AdBlue® und eines gasförmigen NH₃ Dosiersystem angestellt. Die Konfiguration des am Motorprüfstand verwendeten SCR Systems entspricht einer konventionellen Unterbodenanordnung des SCR Katalysators mit DOC und beschichtetem cDPF in motornaher Position (Abbildung 5-43).

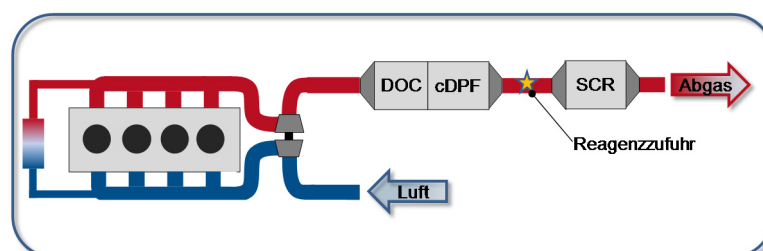


Abbildung 5-43: Layout des Abgasmachbehandlungssystems mit Unterboden SCR Katalysator

Bei dem für die Messungen verbauten SCR Katalysator handelt es sich um einen Fe-Zeolith. Die Messungen werden stets mit vorkonditionierten Katalysatoren gestartet. Hierzu wird in einer definierten Ausheizphase mit 450 °C im SCR Katalysator sichergestellt, dass es zu keiner NH_3 Vorspeicherung aber auch zu keinen HC Einlagerungen kommt und zum anderen, dass der cDPF frei von Rußeinlagerungen ist und so ggf. Einfluss auf das sich einstellende NO_2/NO_x Verhältnis nimmt.

Die Zyklen sind stets kalt gestartet und es kommt eine Heat-Up-Strategie zum schnelleren Aufheizen der Katalysatoren zur Abgasnachbehandlung zum Einsatz.

Dosierfreigabe

Im direkten Vergleich der beiden Reagenzmedien zeigen sich gerade im transienten Anwendungsfall die Unterschiede. Prinzipiell sind Katalysatoren auf Wärmeenergie und somit Temperatur angewiesen, damit sie katalytisch aktiv werden. Es existiert jedoch kein singulärer Aktivierungspunkt, sondern vielmehr gibt es einen Aktivierungsbereich. Das bedeutet, dass der SCR Katalysator auch vor Erreichen seiner Light-Off-Temperatur bereits eine geringe Aktivität zur NO_x Konvertierung besitzt. Aus dieser Tatsache heraus leitet sich die folgende Begründung ab, warum eine frühzeitige Reagenzdosierung auch bei geringen Temperaturen anzustreben ist. Mit einer Absenkung der Dosierfreigabetemperatur von 150 °C auf 120 °C erfolgt im FTP75 die Reagenzzufuhr etwa 100 s früher. Dies entspricht 7,3 % der relativen Zykluszeit, die somit zusätzlich an möglicher Konvertierungszeit zur Verfügung steht. Im NEDC ist die Absolutzeit, bedingt durch den schwächeren Temperaturgradienten, sogar noch ausgeprägter. Hier sind es etwa 170 s, was 14,4 % der gesamten Zykluszeit entspricht, die durch die frühere Dosierfreigabe zusätzlich für eine NO_x Konvertierung genutzt werden kann (Abbildung 5-44).

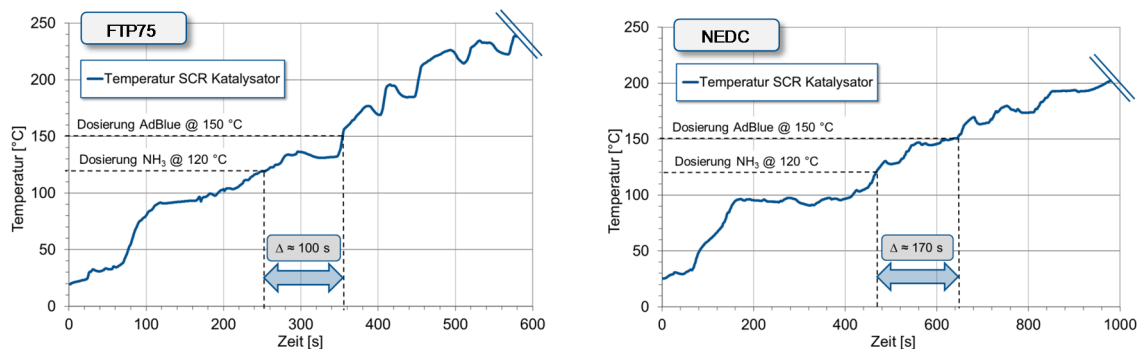


Abbildung 5-44: Vergleich der Dosierfreigabezeiten

Die Kriterien für eine Dosierfreigabe sind stark von dem verwendeten Reagenzmedium abhängig. Hier hat das gasförmige NH_3 gegenüber dem flüssigen AdBlue® Vorteile. Eine AdBlue® Dosierung erfordert immer die Bereitstellung ausreichender Wärmeenergie im Abgas. Nur so ist gewährleistet, dass das flüssige AdBlue® nach Eindosierung vollkommen verdampfen kann. Die sich einstellende Verdampfungsenthalpie führt zudem noch zu einer lokalen Abkühlung des Abgases vor dem Katalysator. Kann der freigesetzte Harnstoff aufgrund unzureichender Aktivierungsenergie nicht in Ammoniak und CO_2 umgesetzt werden, kommt es zu ungewollten Nebenreaktionen, wenn auf die Verwendung eines zusätzlichen Hydrolysekatalysators verzichtet wird. Es bilden sich hierbei kristalline Ablagerungen und Polymerisationsprodukte. So zum Beispiel Biuret nach einer Polymerisation von Harnstoff und Isocyanursäure [64, 103]. Biuret formiert sich vornehmlich in einem Temperaturbereich von 150-190 °C und setzt sich als gelblicher Niederschlag auf der Katalysatoroberfläche ab [64]. Mit steigender Temperatur kann sich hieraus Cyanursäure, Ammelid, Ammelin und Melamin bilden. Aufgrund dieser chemischen Zusammenhänge ist eine aktive NH_3 Vorbeladung des SCR Katalysators nach einem Motorstart mit kaltem Motor und kaltem Abgassystem ohne weiteres nicht möglich. Die Dosierung von gasförmigen NH_3 bietet hier mehr Möglichkeiten, gerade bei der Niedertemperaturdosierung für eine NH_3 Vorbeladung des SCR Katalysators. Die Einschränkung ist hierbei die Selektivität des SCR Katalysators. Im kalten Zustand werden eher HC Moleküle anstelle von NH_3 aufgenommen.

Vorbeladung

Der Einfluss der Reagenzvorbeladung des SCR Katalysators auf die zu erzielende NO_x Performance ist bereits in diversen wissenschaftlichen Veröffentlichungen diskutiert worden, wie z.B. [108]. In der vorliegenden Dissertation soll der Einfluss des verwendeten Reagenzmittels aufgezeigt werden, gerade für den transienten Anwendungsfall im FTP75 und NEDC. Die angegebenen Massen an Reagenzvorbeladung beziehen sich hierbei immer auf gasförmiges NH_3 .

FTP75

Bei Verwendung von AdBlue® als Reagenz ergeben sich sehr große Unterschiede in der erreichbaren DeNO_x Performance zwischen dem vorbeladenen Katalysator und dem nicht vorbeladenen Katalysator. Im Falle eines leeren SCR Katalysators wird eine NO_x Konvertierung von 74 % erreicht. Mit einer NH_3 Vorbeladung von 2 g lässt sich der Wert auf 80 % steigern. Im direkten Vergleich erzielt die gasförmige NH_3 Dosierung eine NO_x Konvertierung von 84 % ohne Vorbeladung und mit 2 g Vorbeladung 86 % (Abbildung 5-45).

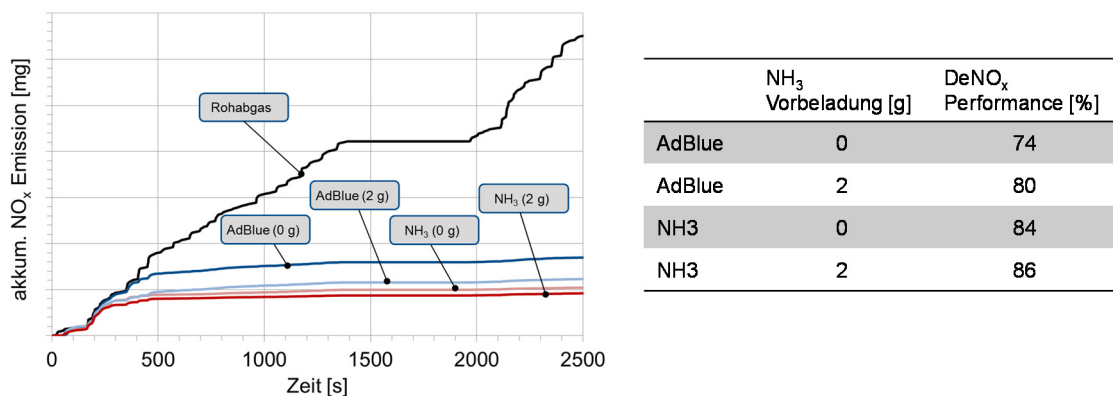


Abbildung 5-45: DeNO_x Performance mit unterschiedlicher NH_3 Vorbeladung und unterschiedliche Reagenzmedien

Es lassen sich folgende Erkenntnisse aus den Ergebnissen ziehen:

- eine NH_3 Vorbeladung hat positiven Einfluss auf die DeNO_x Performance
- gasförmiges NH_3 als Reagenz erzielt eine bessere DeNO_x Performance als flüssiges AdBlue®
- der Einfluss der NH_3 Vorbeladung ist bei gasförmigem Reagenz wesentlich geringer als bei flüssigem

Die Effekte lassen sich wie folgt erklären: Die NH_3 Vorbeladung bewirkt ein vorzeitiges Einsetzen der NO_x Konvertierung auch wenn die Abgas-/SCR-Katalysatortemperatur noch nicht die Dosierfreigabetemperatur erreicht hat. So kann insbesondere in der Phase nach dem Motorstart die Zeit der Aufheizung effektiver genutzt werden. Im Vergleich der Reagenzmedien zeigt sich, dass die Möglichkeit der früheren Dosierung des gasförmigen NH_3 Vorteile bringt, die sich in der DeNO_x Performance widerspiegeln. Die Analyse der einzelnen Phasen des FTP75 zeigt, dass gerade in der ersten Phase nach einem kalten Motorstart die gasförmige NH_3 Dosierung Vorteile bringt (Abbildung 5-46). In dieser Phase ist der Unterschied der beiden Reagenzmedien am größ-

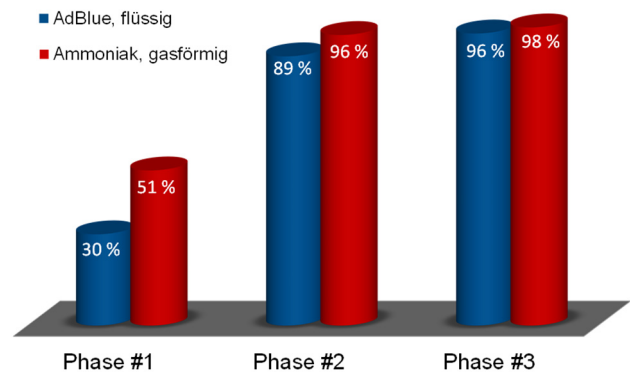


Abbildung 5-46: DeNO_x Performance im FTP75 mit unterschiedlichen Reagenzmedien

ten. Mit gasförmigen NH_3 werden 51 % NO_x Konvertierung erreicht. Hingegen mit flüssigem AdBlue® nur 30 %. In den weiteren Phasen gleichen sich die erzielbaren Konvertierungsraten an. Der Grund hierfür ist abermals in der höheren Temperatur zu sehen, wodurch nun das AdBlue® System seine volle Leistungsfähigkeit hat. Letztlich lässt sich mit der gasförmigen NH_3 Dosierung aber in allen Phasen eine bessere De NO_x Performance erzielen - trotz Gleichhaltung der Randbedingungen, wie bspw. der Mischstrecke und der Geometrie des Mischelementes.

NEDC

Qualitativ ähnliche Ergebnisse resultieren aus den NEDC Messungen. Die absolute NH_3 Vorbeladung beträgt 4 g. Aus Voruntersuchungen ist bekannt, dass diese Menge für den verwendeten SCR Katalysator die maximale Menge darstellt, um ohne NH_3 Schlupf den Testzyklus zu durchfahren. Werden mit der AdBlue® Dosierung NO_x Konvertierungsraten von 54 % erreicht, so können diese auf 58 % bei gasförmiger NH_3 Dosierung gesteigert werden. Diese Werte gelten für Messungen ohne eine NH_3 Vorbeladung des SCR Katalysators. Bei Messungen mit NH_3 Vorbeladung können diese Werte in beiden Fällen gesteigert werden. Der relative Unterschied zwischen flüssiger und gasförmiger Dosierung wird jedoch verschwindend gering (Abbildung 5-47).

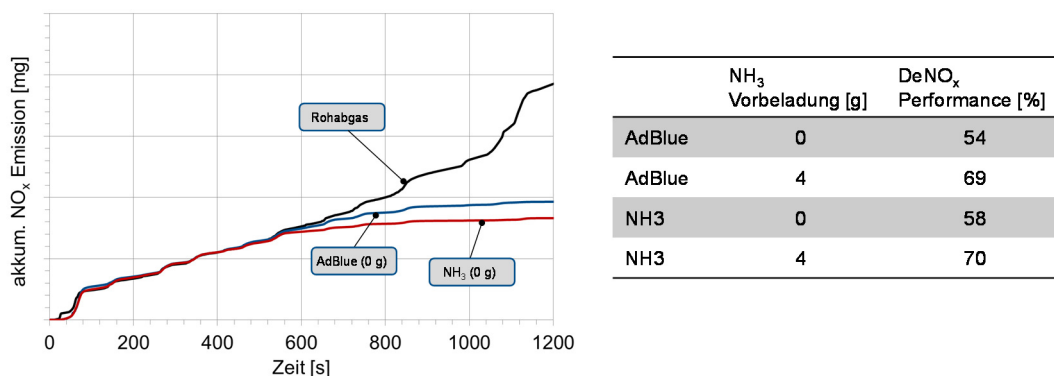


Abbildung 5-47: De NO_x Performance im NEDC mit unterschiedlichen Reagenzmedien

Der Grund hierfür liegt in der eingangs diskutierten Aktivität des SCR Katalysators bei Temperaturen um den Light-Off-Punkt. Dies erfolgt unabhängig vom eingesetzten Reagenz.

Der für die Messungen am Prüfstand eingesetzte Dieselmotor ist mit einer ECU mit Euro 5 Applikation ausgerüstet. Diese ist neben den erforderlichen Anpassungen zum Betrieb des Motors am Motorprüfstand noch dahingehend abgeändert, dass die Implementierung einer Heat-Up Strategie erfolgt. Daher entspricht der Applikationsstand der ECU nicht der eines Serienmotors in einem Serienfahrzeug. Der am Motorprüfstand eingesetzte Dieselmotor hat eine gemessene NO_x Rohemission von 158 mg/km im NEDC. Somit wird der Grenzwert von 180 mg/km für die Euro 5 Abgasnorm nach wie vor unterschritten. Um mit dem zum Einsatz gebrachten SCR System den Grenzwert von 80 mg/km für die Euro 6 Abgasnorm zu unterschreiten ist in diesem Falle eine NO_x Reduzierung von mindestens 49,4 % erforderlich. Mit beiden Dosiersystemen, dem flüssigen auf Basis von AdBlue® und dem gasförmigen NH_3 , konnte dies erreicht werden und sogar auch für den Fall ohne eine NH_3 Vorbeladung (Abbildung 5-48). Mit einer auf den Einsatz eines SCR Systems angepassten Motorkalibrierung kann das Potential der NO_x Emissionsminderung gegebenenfalls noch erweitert werden.

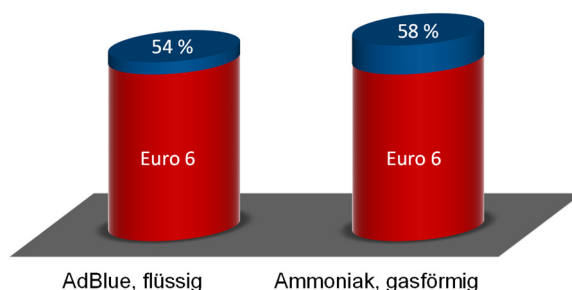


Abbildung 5-48: NO_x Konvertierungspotential von flüssigen und gasförmigen Reagenzmedien

Haltezeit

Im Rahmen der Untersuchungen zur Analyse des Einflusses der NH_3 Vorbeladung auf die DeNO_x Performance des SCR Systems wurde der vorbeladene SCR Katalysator über mehrere Tage ruhen gelassen. In vergleichenden Messungen kann gezeigt werden, dass dies keinen Einfluss auf die NO_x Konvertierung hat. Etwaige Desorptionseffekte, bspw. durch Witterungseinflüsse können somit ausgeschlossen werden. Insgesamt wurden für die Messungen Haltezeiten von mehreren Stunden bis zu vier Tagen berücksichtigt.

Dosierstrategie

Durch die geänderten Randbedingungen für die flüssige und gasförmige Reagenzdosierung ergeben sich Unterschiede in der Dosiercharakteristik. Hierbei führt die Dosierfreigabe für gasförmiges NH_3 bei einer geringeren Temperaturschwelle zu einer Harmonisierung des Dosiervorgangs, gerade im Falle eines Motorkaltstarts in Verbindung mit leerem SCR Katalysator. Im konkreten Fall bedeutet dies, dass im NEDC, bei der untersuchten Konfiguration, 200 s zusätzlich für die Dosierung zur Verfügung stehen. Die primäre Zielvorgabe ist hierbei die aus der Dosierregelung resultierende freigegebene NH_3 Speichermenge des SCR Katalysators. Mit der Dosierung von gasförmigen NH_3 kann die Dosierstrategie so appliziert werden, dass mehrere Dosiersequenzen mit kleineren Amplituden erfolgen. Diese Methode der Dosierung trägt mit dazu bei, dass etwaige NH_3 Hotspots durch eine nicht ideale Gleichverteilung vermieden werden können und so etwaiger temporärer NH_3 Schlupf unterbunden wird. Mit dieser Vorgehensweise wird der Zielwert der Katalysatorbeladung ähnlich schnell erreicht wie mit der aggressiven Dosierstrategie für AdBlue®. Lediglich in den letzten 100 s des NEDC erfolgt eine Gleichdosierung von Ammoniak und AdBlue® bei gleichem Beladungsstand (Abbildung 5-49).

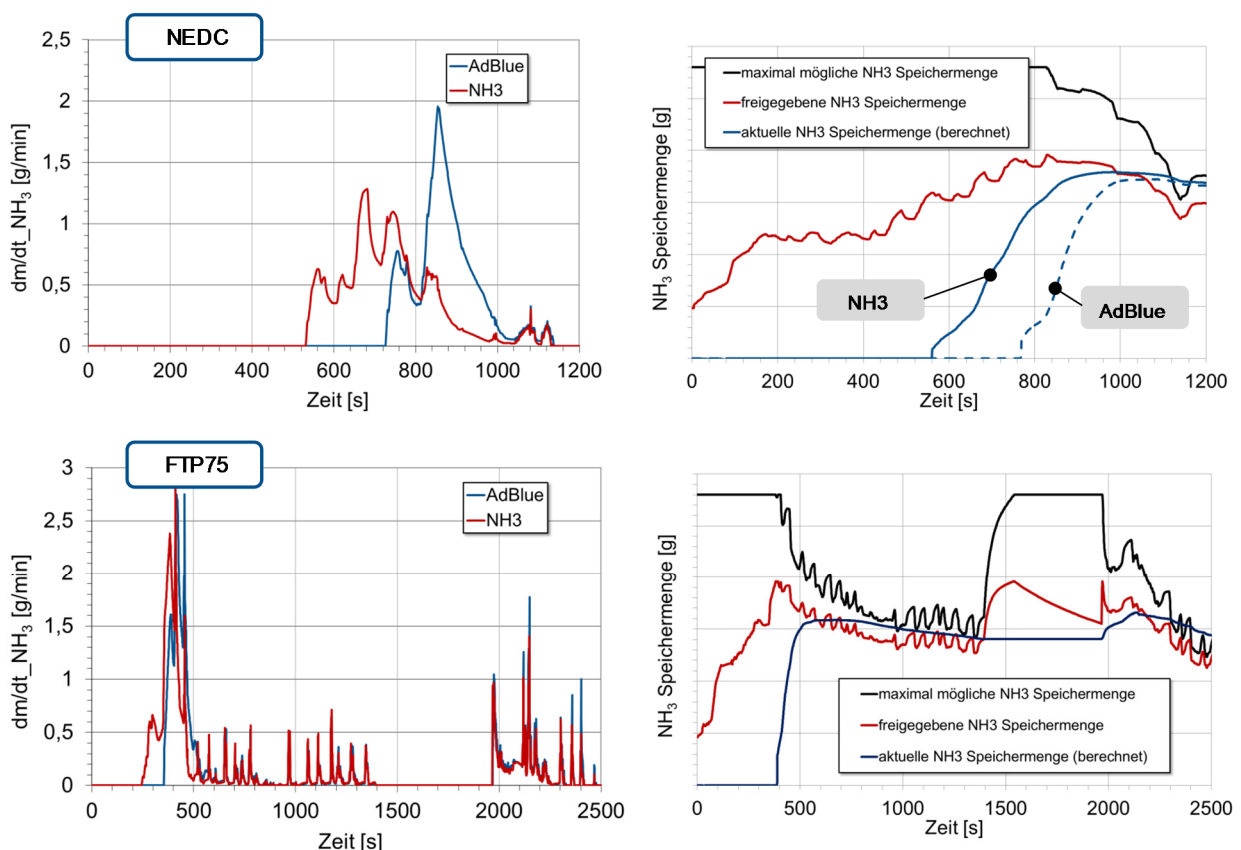


Abbildung 5-49: Vergleich der Dosiercharakteristik für flüssige und gasförmige Reagenzien im transienten Testzyklus

Im Falle eines dynamischeren Testzyklus mit höherem Lastprofil und dem höheren Abgastemperaturverlauf ergibt sich auch eine andere Dosiercharakteristik. Der Unterschied zwischen gasförmigem und flüssigem Reagenz ist weniger ausgeprägt. Der Grund liegt in dem größeren Temperaturgradient in der Anfangsphase des Testzyklus, der den zeitlichen Vorteil der gasförmigen Dosierung relativiert.

alpha vs. *n/APP*

Das entwickelte Dosiermodell bietet die Möglichkeit zur Auswahl zweier unterschiedlicher Methoden der Dosiermengenzuweisung. Dies ist zum einen, die auf dem Feedverhältnis α basierende Dosiermenge. Diese bestimmt sich aus den gemessenen Werten des NO_x Sensors und des HFM Signals, sowie der Kraftstoffeinspritzmenge. Das Modell lässt eine Variation des Feedverhältnisses im Rahmen der Betriebsgrenzen des im Dosiersystem verbauten MFC zu. Standardmäßig wird das System mit $\alpha=1$ betrieben. Zum anderen die auf den Daten des in stationären Motorbetriebspunkten ermittelten Kennfeldes basierende Motordrehzahl/Fahrpedalstellungabhängige (*n/APP*) Dosiermenge.

Der direkte Vergleich dieser beiden Basisstrategien, ohne die in Kapitel 5.3 beschriebenen überlagerten Regelstrukturen, zeigt, dass in der sich einstellenden DeNO_x Performance für einen transienten Testzyklus keine signifikanten Unterschiede messbar sind (Abbildung 5-50). Die Messungen werden mit AdBlue® als Reagenz durchgeführt.

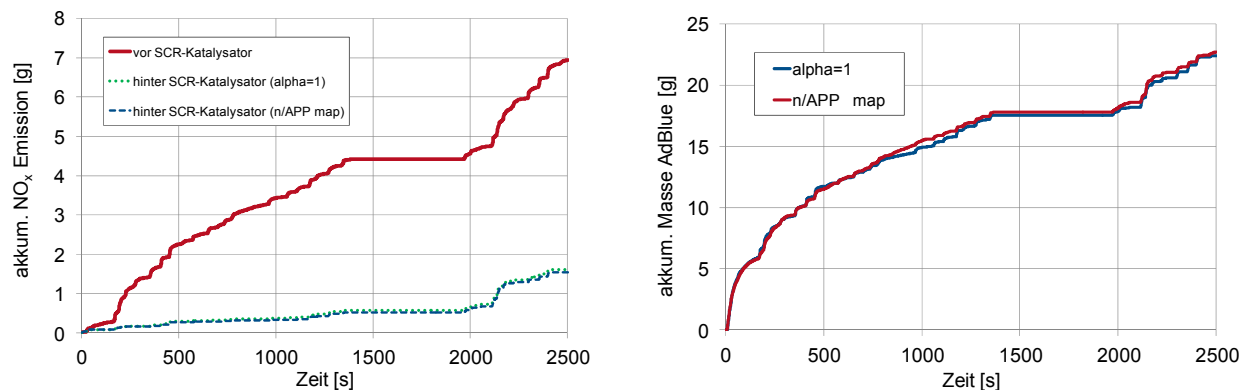


Abbildung 5-50: Dosierstrategie: Feedverhältnis vs. Kennfeld

Ebenso ist die dosierte Menge an AdBlue® in beiden Fällen nahezu identisch. Lediglich in der detaillierten Betrachtung der Dosiercharakteristik lässt sich der Unterschied mittels Darstellung der Dosiermengen in einem Histogramm aufzeigen. Das verwendete Dosiersystem für AdBlue® erfordert die Vorgabe eines Pulsweitsignals als Äquivalent zur Dosiermenge. Die $\alpha=1$ Dosierung hat einen höheren Anteil an Phasen mit Null-Dosierung, die wiederum durch einen höheren Anteil an Phasen mit großen Pulsweiten kompensiert werden. Dementsprechend dominiert bei der *n/APP* Dosierung der Anteil an Phasen mit mittleren Dosiermengen. Das Histogramm in Abbildung 5-51 entspricht einem warmgestarteten FTP75, da hier die absolute Dosiermenge höher ist als bei einem kaltgestarteten Testzyklus. Der qualitative Verlauf bleibt hierbei erhalten, jedoch erhöht sich der Anteil der Null-Dosierung in beiden Fällen.

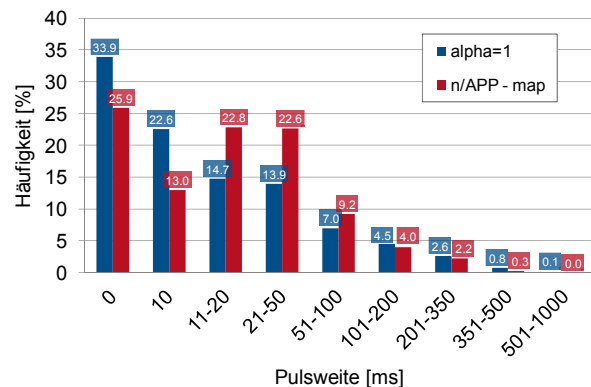


Abbildung 5-51: Histogramm zu den Dosieranteilen

Generell kann nachgewiesen werden, dass sich das stationär ermittelte Dosierkennfeld sehr gut auf den transienten Motorbetrieb anwenden lässt. Der Grund hierfür beruht auf der Systemträgheit des SCR Katalysators. Des Weiteren zeigen die Ergebnisse, dass auf ein *n/APP* Vorsteuerkennfeld verzichtet werden kann. Mit einer α Vorsteuerung kann mit erheblich weniger Applikationsaufwand eine vergleichbare DeNO_x Performance erzielt werden. Mit den vorgestellten zusätzlichen Regelstrukturen können auch Zyklen höchster Dynamik, wie z.B. der US06, gefahren werden.

Bildung von Ablagerungen

Die Zuleitung des gasförmigen NH_3 hin zum Abgasrohr erfolgt ausgehend von dem Rückschlagventil des Dosiersystems über eine etwa 40 cm lange Edelstahlleitung mit einem Innendurchmesser von 6 mm an deren Ende sich die Stabdüse im Abgasrohr befindet (vgl. Abbildung 5-17). Während der Messungen kommt es zu Bildung von Ablagerungen (Abbildung 5-52). Diese formieren sich vorwiegend in dem Bereich nahe dem Rückschlagventil. Durch das sukzessive Zusetzen des Rohrrinnenquerschnitts kommt es dazu, dass dem Abgas nicht die erforderliche Sollmenge an NH_3 dosiert werden kann. Die Reinigung des Systems erfolgt durch Spülung mit Wasser, da es sich um wasserlösliche Kristalle handelt. Zur Stoffbestimmung der Ablagerungen wird eine chemische Analyse durchgeführt. Das Röntgenpulverdiffraktogramm erlaubt die Identifizierung der kristallinen Feststoffe. Die Lagen und Intensitäten der Reflexe sind hierbei von der Art und der dreidimensional periodischen Anordnung der Atome in der Kristallstruktur abhängig. Die Identifizierung erfolgt durch Vergleich mit Pulverdiffraktogrammen von Referenzsubstanzen, die in Datenbanken hinterlegt sind, bzw. durch Vergleich der kristallographischen Daten auf Basis simulierter Pulverdiffraktogramme.

Die Messung erfolgt auf ebenen Probenträgern in Transmissionsgeometrie (Ge[111]-Monochromator, $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ -Strahlung, $\lambda = 1,540598 \text{ \AA}$; Detektor: Dectris Mythen 1K).

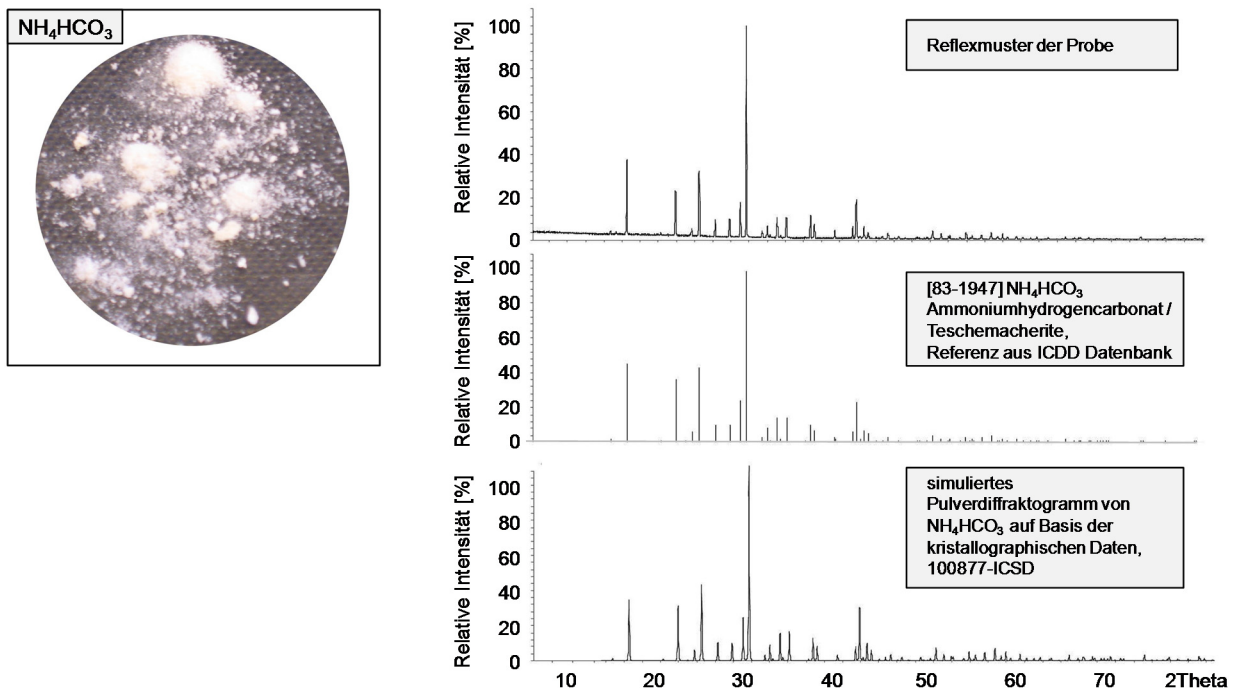


Abbildung 5-52: Röntgenpulverdiffraktogramm des Ammoniumhydrogencarbonats NH_4HCO_3

Das gemessene Röntgenpulverdiffraktogramm (Abbildung 5-52) gleicht in der Reflexlage und der Reflexintensität der Referenzsubstanz aus der ICDD-Datenbank (International Center for Diffraction Data). Gleiches gilt für den Vergleich mit dem Ergebnis der kristallographischen Daten auf Basis des simulierten Pulverdiffraktogrammes. Bei dem untersuchten Feststoff handelt es sich um Ammoniumhydrogencarbonat NH_4HCO_3 . Dieses bildet sich aus dem im motorischen Abgas vorhandenen H_2O und CO_2 und dem zugeführten Reagenz, dem gasförmigen NH_3 , gemäß nachstehender Formel.



Innerhalb des Abgasstrangs kommt es während des Motorbetriebs zu keinen Ablagerungen von Ammoniumhydrogencarbonat, da der Schmelzpunkt bei 60°C und der Verdampfungspunkt bei 106°C liegt. Um Ablagerungen innerhalb der Reagenzzuleitung zu vermeiden bedarf es als konstruktiven Ansatz diese möglichst kurz auszuführen. So kann vermieden werden, dass über den Injektor eine Vermischung des Abgases mit dem in der Leitung verbleibendem Reagenz in den Phasen der Nulldosierung erfolgt und sich so in der ungeheizten Reagenzzuleitung Ablagerungen bilden.

5.5 Potentialuntersuchung zur NO_x Emissionsminderung mittels SCRF

Nachdem mit der entwickelten Methodik der Nachweis erbracht werden konnte, dass eine gasförmige NH₃ Dosierung belegbare Vorteile in Bezug auf die DeNO_x Performance eines SCR Systems hat, sollen die gewonnenen Erkenntnisse auf ein „Next Generation SCR System“ übertragen werden.

SCR Systeme der aktuellen Generation, verfügen vorwiegend über eine Positionierung des SCR Katalysators im Unterbodenbereich (UF SCR) hinter dem cDPF. Der Nachteil dieser separaten und motorfernen Anordnung des SCR Katalysators ist, gerade nach einem Motorkaltstart, der lange Zeitbedarf bis das gesamte Abgasnachbehandlungssystem seine Light-Off-Temperatur erreicht. Bei einem NEDC verstreichen je nach Systemauslegung bis zu 70 % der gesamten Zykluszeit ehe das Temperaturniveau ausreichend hoch ist für eine Dosierfreigabe des Reagenzmittels. Ist der SCR Katalysator nicht vorbeladen, so ist bis zu diesem Zeitpunkt keine NO_x Reduzierung möglich. Mit einer Heat-Up-Strategie, bei der eine Nacheinspritzung des Kraftstoffes erfolgt, kann die Light-Off-Phase verkürzt werden. Nachteilig hierbei ist der damit verbundene zusätzliche Kraftstoffverbrauch. Gleiches gilt für den Einsatz eines elektrischen Heizkatalysators. Ein Ansatz, den SCR Katalysator schneller auf Betriebstemperatur zu erwärmen, ist die Nutzung der vorhandenen höheren Wärmeenergie im vorderen Teil der Abgasanlage. Als Ideal gestaltet sich eine motornahe Positionierung (CC SCR). Diese ist allerdings häufig aus Gründen des Packaging nicht umsetzbar. Ein Lösungsansatz hierzu ist die Systemintegration mehrerer Funktionalitäten. So werden die beiden Einzelkomponenten Partikelfilter und SCR Katalysator zu einer Komponente vereint, dem motornahen SCR-on-DPF Katalysator (SCRF) (Abbildung 5-53).

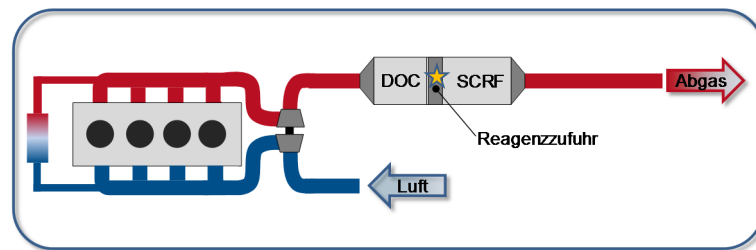


Abbildung 5-53: Layout eines Abgasnachbehandlungssystems mit SCRF Katalysator

Der SCRF Katalysator kann auf diese Weise von dem höheren Temperaturniveau profitieren. Die mittlere Betriebstemperatur im Testzyklus kann am Beispiel des FTP72 um ca. 30-50 °C angehoben werden. Darüber hinaus kann der Gradient des Temperaturanstiegs bis hin zum Erreichen der Light-Off-Temperatur gesteigert werden. Für die emissionsreiche Kaltstartphase des Motors bedeutet dies ein zusätzliches Potential, die Emissionen mit der Abgasnachbehandlung mindern zu können. Das ist besonders für die zur Einhaltung des Grenzwertes entscheidenden ersten Sekunden eines Testzyklus von Relevanz (Abbildung 5-54).

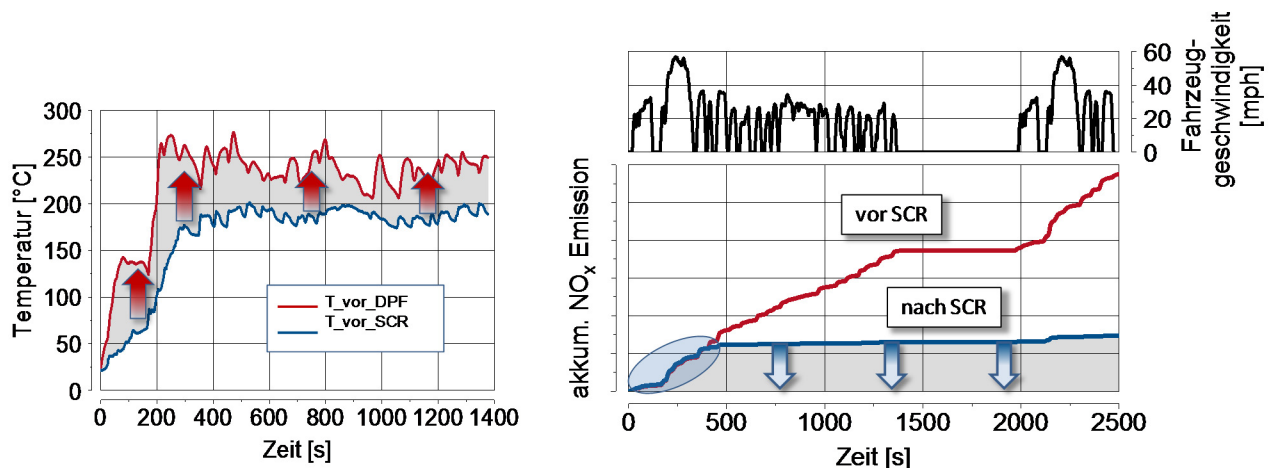


Abbildung 5-54: Temperatur- und akkumulierter NO_x Emissionsverlauf für den FTP

Als Kriterium für die Bewertung der Effizienz eines solchen SCRF Katalysators gilt, dass sowohl die NO_x Umsetzungsrate als auch die Partikelfiltration die Einhaltung der Grenzwerte für aktuelle und zukünftige Abgasnormen gewährleistet.

Ausgehend hiervon stellt das UF SCR System die Referenz dar. Ein CC SCR mit Verzicht auf einen DPF beschreibt in Bezug auf die De NO_x Performance die Idealkonstellation. Bei Verwendung der Systemintegration SCRF ist mit einer Effizienz der NO_x Reduktion im Bereich zwischen diesen beiden Varianten zu rechnen. Zur Quantifizierung des Einflusses der einzelnen Einflussparameter werden diese separiert analysiert. Die Untersuchungen umfassen hierbei die folgenden Aspekte (Abbildung 5-55):

Primäre Einflussparameter

- Katalysatorvolumen als Stellgröße der Raumgeschwindigkeit
- Washcoat in Abhängigkeit der Beschichtungsmenge
- Substrat: Vergleich zwischen offener Wabenstruktur mit Oberflächenkatalyse (SCR Katalysator) und Wall-Flow Monolithen mit Wanddurchdringungskatalyse (SCRF Katalysator)

Sekundäre Einflussparameter

- Wechselwirkung zwischen eingespeichertem Ruß und der NO_x Umsatzeffizienz
- die Auswirkung der Einlagerung von Asche und die damit einhergehende Verminderung der aktiven katalytischen Wirkzonen
- Auswirkung auf De NO_x Performance bei Verwendung von Kraftstoffadditiven

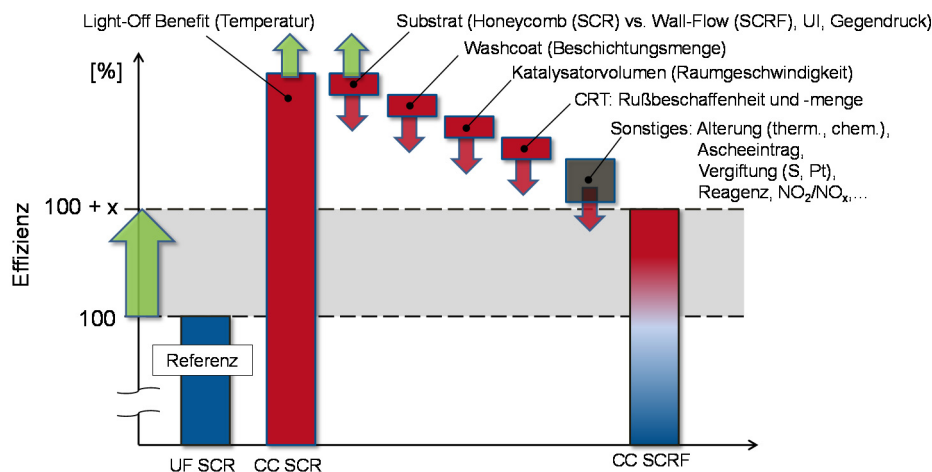


Abbildung 5-55: Effizienzübersicht für Systeme zur NO_x Minderung basierend auf der selektiven katalytischen Reduktion [117]

Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass noch weitere Einflussparameter existieren, die Auswirkungen auf die De NO_x Performance eines SCRF Katalysators haben. Stellvertretend hierfür sei bspw. die chemische Alterung oder eine Deaktivierung durch Schwefel oder Pt Vergiftung genannt.

Ziel der hier vorliegenden Arbeit ist es, den zuvor erarbeiteten Ansatz der Entwicklungsmethodik zu übertragen und auf die Systembetrachtung und Bewertung eines SCRF Systems anzuwenden.

Methodische Vorgehensweise

- In der ersten Phase erfolgt die **Analyse der Strömung von Abgas und Reagenz** in Bezug auf die sich einstellende Gleichverteilung. Hierzu wird ein an die geometrischen Gegebenheiten angepasstes NH_3 Dosiermodul, basierend auf den Ergebnissen durchgeführter CFD Simulationen, entwickelt und gefertigt. Anschließend wird am Strömungsprüfstand eine Validierungsmessung durchgeführt. Abschließend erfolgt der Vergleich zwischen der **Eigenentwicklung eines gasförmigen NH_3 Dosiermoduls** und einem industriell gefertigten Mischelement für die AdBlue® Dosierung am Motorprüfstand.
- Die zweite Phase behandelt den **Vergleich von SCR und SCRF Katalysatoren** am Motorprüfstand. Im Vordergrund stehen die oben aufgeführten Aspekte für die Durchführung

einer Potentialanalyse bezüglich der Auswirkungen auf die sich einstellende DeNO_x Performance.

5.5.1 Strömungsanalyse und Entwicklung eines NH₃ Dosiermoduls für SCRF Systeme

5.5.1.1 Experimentelle Untersuchung der Abgasströmung vor dem SCRF Katalysator

Durch die motornahe Positionierung des gesamten Abgasnachbehandlungssystems bei SCRF Anwendungen bedarf es einer kompletten Neukonzeptionierung der Abgasführung für den verwendeten Motor. Entsprechend den fixen geometrischen Rahmenbedingungen mit dem waagerechten Abgasaustritt aus dem Turbolader und der Strömungsumlenkung in den senkrecht verbauten DPF, muss der DOC neu positioniert werden, um Bauraum für ein Misch-/Dosiermodul zu schaffen.

DOC

Es werden unterschiedliche konstruktive Lösungen für eine Neupositionierung des DOC mit Messungen am Motorprüfstand untersucht. Das Ziel ist die Selektion einer DOC Variante, die hinsichtlich der sich einstellenden Gleichverteilung aus der Abgasströmung mit dem dosierten Reagenz vor SCRF den besten UI ergibt und so die bestmögliche Ausgangsbasis bietet. Die Untersuchungen werden für einen Referenzbetriebspunkt des Motors durchgeführt. Insgesamt werden drei unterschiedliche Varianten vermessen.

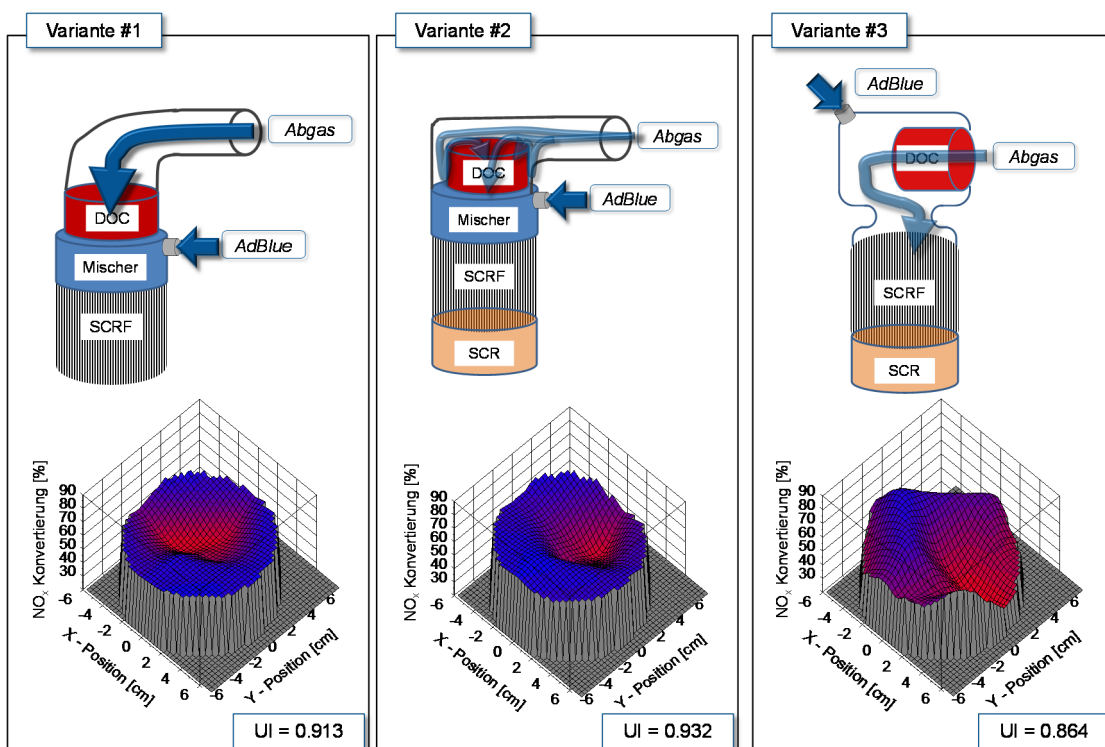


Abbildung 5-56: Variantenvergleich zur Gleichverteilung bei unterschiedlichen DOC Einbaupositionen

- **Variante #1:** Referenzsystem in Gestalt eines typischen Euro 5 Abgasnachbehandlungssystems. Hierbei wird der DPF durch einen SCRF ersetzt. Anstelle des Verbindungsconnings zwischen DOC und DPF kommt ein Referenzmischelement.
- **Variante #2:** Ist eine konstruktive Lösung, um die Baulänge zu reduzieren. Der DOC wird in senkrechter Position in den modifizierten Einlaufkonus integriert. Das Abgas kann ihn komplett umströmen aber nur von oben durchströmen. Der so gewonnene Bauraum kann für das Mischelement und einen optionalen SCR Brick hinter dem SCRF Katalysator genutzt werden. Die Gesamtlänge entspricht so nahezu dem konventionellen Euro 5 System.

- *Variante #3:* Der DOC ist waagrecht in dem Canning positioniert. Das gesamte vom Turbolader kommende Abgas kann ihn so ohne weitere Umlenkung direkt durchströmen. Die Reagenzdosierung erfolgt auf Höhe der Stirnwand des Cannings. Für die Verbesserung der Tropfenzerstäubung sind Prallbleche im Canning eingebracht. Aufgrund der sich einstellende Strömungsturbulenz durch die Umlenkung und die relativ lange Hydrolysestrecke wird in dieser Variante auf einen zusätzlichen Mischer verzichtet.

Die Messungen werden bei stationärem Motorbetrieb mit einem Abgasmassenstrom von 200 kg/h durchgeführt. Abweichend von der Abbildung 5-56 ist für die Untersuchung ein SCR Katalysator verbaut, hinter diesem die Messung erfolgt. Gemessen wird die NO_x Konzentration, um so indirekt die Verteilung von NH_3 zu bestimmen. Die Ergebnisse belegen, dass es mit der in Variante #2 dargestellten konstruktiven Lösung möglich ist, eine vergleichbare Gleichverteilung wie mit dem Referenzsystem aus Variante #1 zu erzielen. Für alle weiteren Messungen wird der Aufbau für DOC und Mischer nach Variante #2 erfolgen. Begründet ist dies in den geometrischen Aspekten durch den wesentlich höheren Uniformity Index (UI) gegenüber Variante #3 und dem nahezu identischen Gegendruckverhalten gegenüber Variante #1.

SCR versus SCRF

Die sich einstellende Gleichverteilung in den beiden Konzepten - wandundurchlässige SCR mit der gleichgerichteten Strömung und wanddurchlässige SCRF mit der Wall-Flow-Strömung - wurde in verschiedenen Betriebspunkten miteinander verglichen.

Als Ergebnis zeigt sich, dass im Falle des SCR Katalysators bedingt durch die Gleichrichtung nur eine Längsströmung vorliegt und die eigentliche Durchmischung somit vor Eintritt in den Katalysator ausgebildet sein muss. Hingegen beim SCRF Katalysator bewirkt die Oktroyierung der Wall-Flow-Strömung eine zusätzliche Ausprägung der Gleichverteilung auch innerhalb des SCRF Katalysators. Dieser Superpositionseffekt für die Gleichverteilung spiegelt sich in dem höheren UI wider (Abbildung 5-57). Das hierbei verwendete SiC Substrat erlaubt bedingt durch seine Segmentierung und seiner Honeycomb Struktur nur eine Wanddurchströmung an 2 bis maximal 4 Seiten. Substrate ohne Segmentierung, wie z.B. Cordierite, könnten hier gegebenenfalls noch bessere Voraussetzungen für eine noch homogenere Gleichverteilung gewährleisten. Ein Nachteil wäre hierbei jedoch durch die geminderte thermische und mechanische Stabilität zu erwarten.

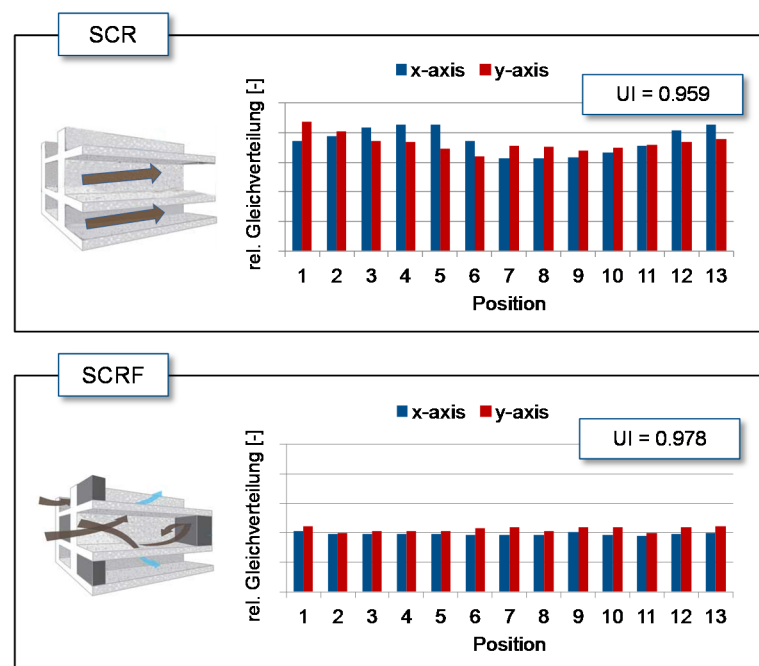


Abbildung 5-57: Gleichverteilung bei SCR und SCRF Katalysatoren [117]

5.5.1.2 Anforderungen an ein NH₃ Dosiermodul für motornahe SCRF Systeme

Die Einbringung des Reagenzmittels in den Abgasstrang und dessen Aufbereitung und Verteilung im Abgas ist ein wichtiger Parameter für die zu erzielende DeNO_x Performance. Bei UF SCR Systemen stehen hierfür meist „lange“ Mischstrecken mit kleinen Abgasrohrdurchmessern zur Verfügung. Trotz der hieraus resultierenden hohen Raumgeschwindigkeiten ist bei Verwendung eines entsprechend ausgelegten Mischers ein hoher Uniformity Index möglich (vgl. Kapitel 5.2.). Bei Zuführung eines flüssigen Reagenzmediums, was in der Regel längs zur Abgasströmung erfolgt, sind Injektor und Mischer als separate Bauteile ausgeführt. Im Falle des SCRF Systems gestalten sich die Geometrie und die Positionierung der Düse und des Mischers gänzlich anders. Hier steht nur eine sehr kurze Mischstrecke bei tendenziell großen Abgasrohrdurchmessern zur Verfügung. Schon aus diesem Grund bietet sich eine Dosierung des Reagenzmittels quer zur Abgasströmung an. Dies ermöglicht durch eine entsprechend ausgelegte Abgasführung, z.B. mittels Leitblechen, eine Verlängerung der Hydrolysestrecke (bei Ad-Blue® als Reagenz) und Erzeugung von Turbulenzen unter Beibehaltung der äußeren Ausmaße. Der limitierende Faktor ist an dieser Stelle das Gegendruckniveau, welches nicht nachteilig beeinflusst werden darf.

Ein alternativer Ansatz, der im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgegriffen wird, umfasst die Entwicklung eines Moduls für die gasförmige NH₃ Dosierung. Solch ein Dosiermodul stellt ein Integralbauteil von Düse und Mischelement dar. Der funktionale Unterschied zu dem im Absatz zuvor beschrieben System ist die Zuführung des Reagenzes in den Abgasmassenstrom. Diese erfolgt hier von innen nach außen, wohingegen es bei dem Ansatz mit flüssigen Reagenz von außen nach innen geschieht.

Definition der Anforderungen

Für ein SCRF System gelten gänzlich andere geometrische Randbedingungen als zuvor für das UF SCR System. Die Reagenzdosierung erfolgt innerhalb des Cannings zwischen DOC und SCRF (Abbildung 5-58). Die für die Vermischung von Reagenz und Abgas zur Verfügung stehende Mischstrecke im Abgasstrang reduziert sich gegenüber UF SCR Anwendungen von 40-100 cm auf unter 10 cm. Das sich ergebende Aspektverhältnis verringert sich von $l/D > 15$ (UF SCR) auf $l/D < 0,6$ (SCRF). Trotz der geänderten Randbedingungen bleiben die Grundanforderungen nach einer bestmöglichen Gleichverteilung bei geringstem Gegendruck bestehen.

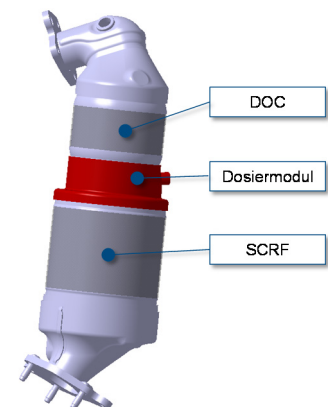


Abbildung 5-58: Aufbau eines Abgasnachbehandlungssystems für motornahe SCRF Systeme

Für das Lastenheft des NH₃ Dosiermoduls ergeben sich folgende Punkte:

- hoher Uniformity Index für die Gleichverteilung des Reagenz innerhalb charakteristischer Motorbetriebspunkte in gesetzlichen Zertifizierungszyklen
- minimaler Abgasgegendruck in allen Motorbetriebspunkten
- hohe Dynamik; rasche Stabilisierung des Uniformity Index
- hohe Gleichverteilung des im Abgas vorhandenen Rußes für eine homogenen Rußbelastung des SCRF
- Vermeidung von festen Ablagerungen, bspw. durch Sicken in der Mischgeometrie, die zu etwaigen Sedimentationen aus Ruß oder Reagenzderivaten führen
- Robustheit und Alterungsbeständigkeit
- Realisierung eines kompakten Systems bei geringem Fertigungsaufwand und –kosten

5.5.1.3 Auslegung und Bewertung mittels CFD Strömungssimulation

Methodisches Vorgehen zur Definition der Randbedingungen

Abweichend zu den in Kapitel 5.2 behandelten Düsenformen für NH_3 muss in diesem Fall die Systemgrenze weiter gefasst werden. Das auszulegende NH_3 Dosiermodul integriert die Reagenzzuführung (Düse), die Reagenzverteilung (Mischer) und zusätzlich die Geometrie des Cannings.

Geometrische Randbedingungen

Die Maße des Cannings sind fest durch die vorliegende Abgasanlage definiert. Dies gilt für den Ein- und Auslassdurchmesser (120 mm, 144 mm) und die Gesamtlänge (75 mm). Der Freiheitsgrad liegt in der Gestaltung der Form (Abbildung 5-59). Aufgrund der sich ändernden Durchmesser von DOC Ausgang auf SCRF Eingang ist es erforderlich eine Querschnittsänderung zu realisieren. Die direkte Verbindung als Konus (Variante #1) wirkt wie ein Diffusor (Unterschallbetrachtung) mit dem geringsten Einfluss auf den Gegendruck. In Variante #2 wird der Durchmesser des DOC zunächst beibehalten und erst im weiteren Verlauf der Mischstrecke erfolgt eine lineare Querschnittserweiterung. Je später dies erfolgt, desto größer wird der Expansionswinkel δ des Konus. Dies lässt die Wahrscheinlichkeit von sich einstellenden Strömungsablösungen steigen und hat so negativen Einfluss auf die angestrebte Homogenisierung von Reagenz und Abgas. Variante #3 beschreibt eine Art Venturi-Düse. Der Vorteil hierbei wäre durch die Querschnittsverjüngung eine bessere Gleichverteilung. Nachteilig ist der erhöhte dynamische Druck und somit der Abgasgegendruck. Zudem wird es durch den sehr steilen Expansionswinkel δ ebenfalls zu Strömungsabrissen an der Rohrwinnenwand kommen. Basierend auf diesen Erkenntnissen wird für das NH_3 Dosiermodul auf Variante #1 als Form des Canning zurückgegriffen.

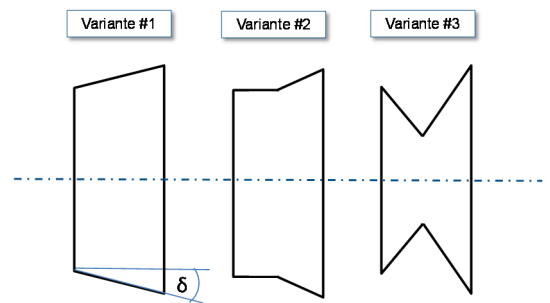


Abbildung 5-59: Mögliche Außenkonturen des NH_3 Dosiermoduls

Für die Grundform der Düse werden die Geometrien der gerade Düse und der L-Profil Düse aus Kapitel 5.2.1 verwendet. Als Erweiterung zur geraden Düse wird diese als zusätzliche Version in Form eines Kreuzes ausgeführt.

Das Mischelement als letzte Komponente des NH_3 Dosiermoduls wird in vier unterschiedlichen Varianten ausgeführt (Abbildung 5-60 und Abbildung 5-61). Diese werden entsprechend dem Ergebnis der CFD Simulation in zwei respektive drei Evolutionsstufen weiterentwickelt. Der Grundgedanke bei der Modellierung der Mischelemente ist, dass für eine bestmögliche Gleichverteilung zwei unterschiedliche Konzepte verfolgt werden. Zum einen soll dies durch eine bewusste Turbulenzerzeugung in der Strömung erfolgen. Zum anderen durch eine definierte Ausbildung und Führung der Strömung mittels Leitblechen und der entsprechenden Positionierung der NH_3 Austrittsbohrungen an der Düse.

Physikalische Randbedingungen

Die Basis des Berechnungsansatzes zum iterativen Lösen der Differentialgleichungen des verwendeten Turbulenzmodells bildet der Solver. In diesem werden die physikalischen Randbedingungen der zu berechnenden Strömung als Eingangsgrößen definiert. Dies umfasst Parameter wie bspw. den Massenstrom von Abgas und Reagenz, die Umgebungsbedingungen (Temperatur, Druck) und den Temperaturübergangskoeffizient.

Das methodische Vorgehen zur Entwicklung des NH_3 Dosiermoduls erfolgt in mehreren Phasen. In der ersten Phase liegt der Schwerpunkt auf der Analyse und Bewertung von unterschiedlichen Geometrieformen. Um die Fülle der sich hieraus ergebenden Variationsmöglichkeiten für die Durchführung der Simulation zu begrenzen, werden mit dem Aspekt einer zeitökonomischen Vorgehensweise die folgenden Annahmen getroffen:

- drei unterschiedliche Abgasmassenströme: 45 kg/h, 100 kg/h und 200 kg/h
- Abgaszusammensetzung: Gasgemisch aus 75 % N₂ und 25 % O₂ (Massenverhältnis)
- konstanter Ammoniakmassenstrom: 0,1 kg/h (100 % NH₃)
- Die Orientierung der Abgasströmung wird parallel zum Vektor der Gravitationskraft angenommen. Daher wird der Einfluss der Schwerkraft vernachlässigt.
- Der Druck am Auslass wird als konstant ($1 \cdot 10^5 \text{ Pa} = 1 \text{ bar}$) definiert.
- „kalter“ Zustand → Abgas und Reagenz haben Umgebungstemperatur von 20 °C
Dies dient der Reduktion der benötigten Rechenzeit. Mit dem verwendeten Equipment bedeutet dies eine Zeitersparnis von 30 % bei einer Ergebnisabweichung für den UI von 0,05 im Vergleich zu einer „warmen“ Simulation.

Numerische Randbedingungen

Neben den physikalischen Randbedingungen existieren numerische Randbedingungen, deren Aufgabe die Verknüpfung von Rand und Innenfeld ist. Die Summe aus physikalischen und numerischen Randbedingungen muss der Anzahl der zu lösenden Erhaltungsgleichungen entsprechen. Die Strömungsgeschwindigkeit an der Wand wird zu Null gesetzt. Somit wird die Reibung während der Berechnung mit berücksichtigt.

Auswahl des numerischen Lösungsverfahrens

Durch die Erhaltungsgleichungen für Masse, Impuls und Energie lassen sich Strömungen mathematisch beschreiben [109]. Jedoch ist das vollständige Lösen der zugrunde liegenden Differentialgleichungen mit einem rein algebraischen Ansatz nicht möglich. Numerische Näherungsverfahren dienen daher zur Approximation einer Lösung. Die direkte numerische Simulation (DNS) offeriert eine numerische Lösung der vollständigen, instationären Navier-Stokes-Gleichungen [110]. Sie repräsentieren bei einer hochaufgelösten Betrachtung der Strömung die genaueste Methode der numerischen Strömungssimulation [110]. Für den hier betrachteten Anwendungsfall ergibt sich jedoch folgende nachteilige Eigenschaft. Die detaillierte Beschreibung von turbulenten Strömungen erfordert eine hochauflösende Diskretisierung von räumlichen und zeitlichen Intervallen und somit einen sehr hohen Rechenaufwand. Die hier vorliegende Problemstellung erlaubt allerdings den Verzicht auf die Berücksichtigung kleinster Temperatur- und Druckschwankungen. Somit kann auf ein vereinfachtes Modell, mit reduzierter Anzahl der aufgelösten Terme innerhalb der Erhaltungsgleichungen, zurückgegriffen werden. Die Güte der Aussagekraft der Simulationsergebnisse bleibt dennoch erhalten. Die Umsetzung erfolgt mittels der statistischen Modellierung, auch Reynolds-gemittelte-Navier-Stokes-Gleichungen (Reynolds-Average-Navier-Stokes – RANS) genannt. Die Modellierung der turbulenten Strömung erfolgt durch Ersetzen des Momentanwertes für die Geschwindigkeitskomponenten und den Druck durch die Addition von Mittelwert und statistischer Schwankung. Des Weiteren werden Dichte und Viskositätschwankungen vernachlässigt [109, 111]. Der resultierende Reynoldssche Spannungstensor beinhaltet Normal- und Schubspannungen. Für die Schließung des noch offenen Gleichungssystems sind zusätzliche Annahmen für die Komponenten des Reynoldsschen Spannungstensors in Form von Gleichungen (Turbulenzmodelle) erforderlich.

Turbulenzmodelle

Das Theorem der Spezieserhaltung beschreibt die Vermischung zweier Fluide in einer Einphasenströmung. Das in dieser Arbeit verwendete CFD Tool AVL Fire stellt für das entsprechende Modul (Species Transport) unterschiedliche Turbulenzmodelle bereit. Eine einfache Variante, unter Vernachlässigung der Reynolds-Spannungen, stellt das laminare Modell dar. Die Wirbelviskositätsmodelle approximieren den Reynoldsschen Spannungstensor nach der Hypothese von Boussinesq durch eine „turbulente Zähigkeit“ oder eine Wirbelviskosität. Das Null-Gleichungsmodell nähert die Wirbelviskosität

durch algebraische Beziehungen an, wobei keine Differentialgleichungen für den Wirbeltransport gelöst werden (Baldwin-Lomax-Modell, Turbulenzmodell nach Cebeci und Smith). Die Eingleichungsmodelle berechnen die Wirbelviskosität mit einer Gleichung für den Transport der turbulenten kinetischen Energie. Das Zwei-Gleichungsmodell verwendet hierfür zwei Differentialgleichungen [112]. Typische Zwei-Gleichungsmodelle sind das k - ε - sowie das k - ω -Modell. Das k - ε -Modell beschreibt die Entwicklung der turbulenten kinetischen Energie und der isotropen Dissipationsrate. Es eignet sich zur Simulation einfacher Strömungen. Für die Simulation von wandnahen Strömungen, Strömungen an Staupunkten und bei hohen Reynolds-Zahlen ist es jedoch nicht empfehlenswert [113]. Das k - ω -Modell basiert auf der Lösung einer Transportgleichung für k und einer Transportgleichung für die charakteristische Frequenz ω der energiedissipierenden Wirbel. Zusammenfassend gilt: das k - ω -Modell bietet Vorteile in wandnahen Bereichen des Strömungsfeldes, wohingegen das k - ε -Modell in wandfernen Gebieten zu bevorzugen ist [114]. Weitere Turbulenzmodelle werden durch die beschriebenen Reynolds-Spannungsmodelle (RANS) und die Wirbelsimulationsmodelle (direkte Auflösung der Gleichungen, DNS, Large Eddy Simulation – LES) repräsentiert [109, 113].

Das in der vorliegenden Arbeit verwendete Modell ist das k -zeta- f -Modell. Es basiert auf dem k - ε -Modell. Der Unterschied besteht darin, dass als Geschwindigkeitsgröße nicht der Schwankungsindex der Geschwindigkeit, sondern der Quotient des Schwankungsindex für die turbulente kinetische Energie verwendet wird [112]. Das Modell ist auf die Simulation von Einphasenströmungen, speziell mit Strömungen an Staupunkten abgestimmt und bildet so Effekte in Wandnähe gut ab.

5.5.1.4 Ausgeführte Geometrien für ein NH_3 Dosiermodul

Insgesamt werden vier unterschiedliche geometrische Ansätze untersucht. Jedes Konzept verfolgt hierbei einen anderen Grundgedanken.

Kreuzdüse ohne Mischelement

Die Form der minimalen Komplexität repräsentiert die Kreuzdüse ohne Mischelement. Sie zeigt das Potential einer Düsenvariante auf, die frei von zusätzlichen strömungsbeeinflussenden Komponenten ist. Bestandteil sind zwei gerade Stabdüsen, jeweils in horizontaler und vertikaler Position. Insgesamt sind 21 Austrittsbohrungen vorgesehen. Jeweils fünf in den vier Armen und eine im Schnittpunkt. Mit dem Ziel das Reagenz gleichmäßig in alle vier Quadranten zu dosieren, sind die Austrittsbohrungen in einem Winkel zur Strömungsachse des Abgasmassenstroms angebracht. Der Geschwindigkeitsvektor des Reagenzes am Austritt besitzt somit eine axiale und radiale Komponente.

Stabdüse mit Deltamischer

Hierbei wird auf ein zusätzliches Mischelement zurückgegriffen, das in der Draufsicht an den griechischen Buchstaben Δ erinnert. Das Ziel der geometrischen Form ist, durch die Strömungsführung vier stationäre Wirbelpaare zu induzieren. Der Effekt beruht auf dem sich einstellenden Druckausgleich hinter dem Mischelement. Die NH_3 Dosierung erfolgt stromaufwärts des Deltamischers mit einer Stabdüse. Diese hat über ihre Länge 7 Austrittspaare. Der Winkel zweier Austrittsbohrungen eines Paares beträgt 110° zueinander und ist in Strömungsrichtung des Abgasmassenstromes ausgerichtet.

Stabdüse mit Drallblech

Diese Variante der Turbulenzerzeugung strebt eine Umlenkung des Abgasmassenstromes an. Anders als beim Deltamischer soll nur ein Wirbel erzeugt werden. Umgesetzt wird dies durch die Geometrie des Mischers. Ein in sich um 90° tordiertes Drallblech induziert der Abgasströmung einen um die Mittelachse des Cannings gerichteten Drall. Neben dem Torsionswinkel hat auch die Länge des Bleches Einfluss auf die sich einstellende Strömung. Um die freie Wirbelausbildung nicht zu behindern, wird die Länge des Drallbleches auf 50 % der zur Verfügung stehenden gesamten Mischstrecke begrenzt. Für die durchgeführte Simulation sind dies 35 mm. Als Düse kommt die identische Stabdüse, wie zuvor beim Deltamischer zum Einsatz. Sie ist ebenfalls stromaufwärts senkrecht vor dem Mischelement positioniert.

L-Profil Düse mit Trichter

Der vierte Entwurf für die Geometrieform eines NH_3 Dosiermoduls vereint die L-Profil Düse mit zwei Trichterelementen in kaskadenförmiger Anordnung. Entsprechend dem Funktionsprinzip der L-Profil Düse wird das Reagenz zur Mitte des Cannings geführt und von dort radial nach außen dosiert (vgl. Abbildung 5-21). In Bezug auf die geometrischen Randbedingungen hat neben der Anzahl, dem Durchmesser und der Anordnung der NH_3 Austritts- und der Abgasdurchgangsbohrungen vor allem der jeweilige Trichterwinkel und Trichterdurchmesser einen entscheidenden Einfluss auf die resultierende Gleichverteilung und den Abgasgegendruck.

5.5.1.5 Ergebnisdarstellung der CFD Simulation

Die Durchführung der Simulation und die Aufbereitung der Ergebnisse soll nachfolgend erläutert werden. Die Prozedur zur Entwicklung einer Geometrie für ein NH_3 Dosiermodul, die den zuvor definierten Anforderungen gerecht wird, unterteilt sich in mehrere Evolutionsstufen. In der ersten Evolutionsstufe wird das Strömungsverhalten aller vorgestellten Varianten simuliert. Der Schwerpunkt der Analyse und zugleich das primäre und sekundäre Kriterium der Beurteilung sind das Homogenisierungsverhalten und der Abgasgegendruck. Der Betrachtungshorizont umfasst dabei drei Ebenen in unterschiedlichen Abständen. Die Ebene 1 liegt 64 mm vom Punkt der NH_3 Dosierung entfernt und entspricht so genau dem Maß, den der SCRF Katalysator entfernt ist. Die Ebenen 2 und 3 sollen aufzeigen, wie sich die Strömung verhalten würde, wenn die geometrischen Randbedingungen dahin gehend geändert würden, dass 40 mm bzw. 100 mm an zusätzlicher Mischstrecke zur Verfügung stehen würden. Der Abgasmassenstrom beträgt stets konstante 100 kg/h. In weiteren Simulationen wird der Einfluss unterschiedlicher Abgasmassenströme betrachtet. Die dargestellten Bilder (Abbildung 5-60 und Abbildung 5-61) der CFD Simulation zeigen immer eine Momentaufnahme der NH_3 Massenverteilung 1 s nach dem Start der NH_3 Dosierung. In der zweiten Evolutionsstufe werden für alle Varianten Optimierungen an der geometrischen Form durchgeführt. Sie dient der Bestimmung des Konzeptes, das am aussichtsreichsten erscheint. Die Simulationen werden jedoch nur noch für einen Abgasmassenstrom von 100 kg/h durchgeführt. In der letzten Evolutionsstufe wird das ausgewählte Konzept in einer weiteren Iterationsschleife optimiert und seine endgültige Form definiert.

1. Evolutionsstufe

In Abbildung 5-60 sind die beschriebenen Geometrien und CFD Simulationsergebnisse für die NH_3 Massenverteilung in unterschiedlichen Entfernungen zum Mischelement und bei unterschiedlichen Abgasmassenströmen dargestellt. Diese repräsentieren den Ausgangszustand für den weiteren Optimierungsprozess.

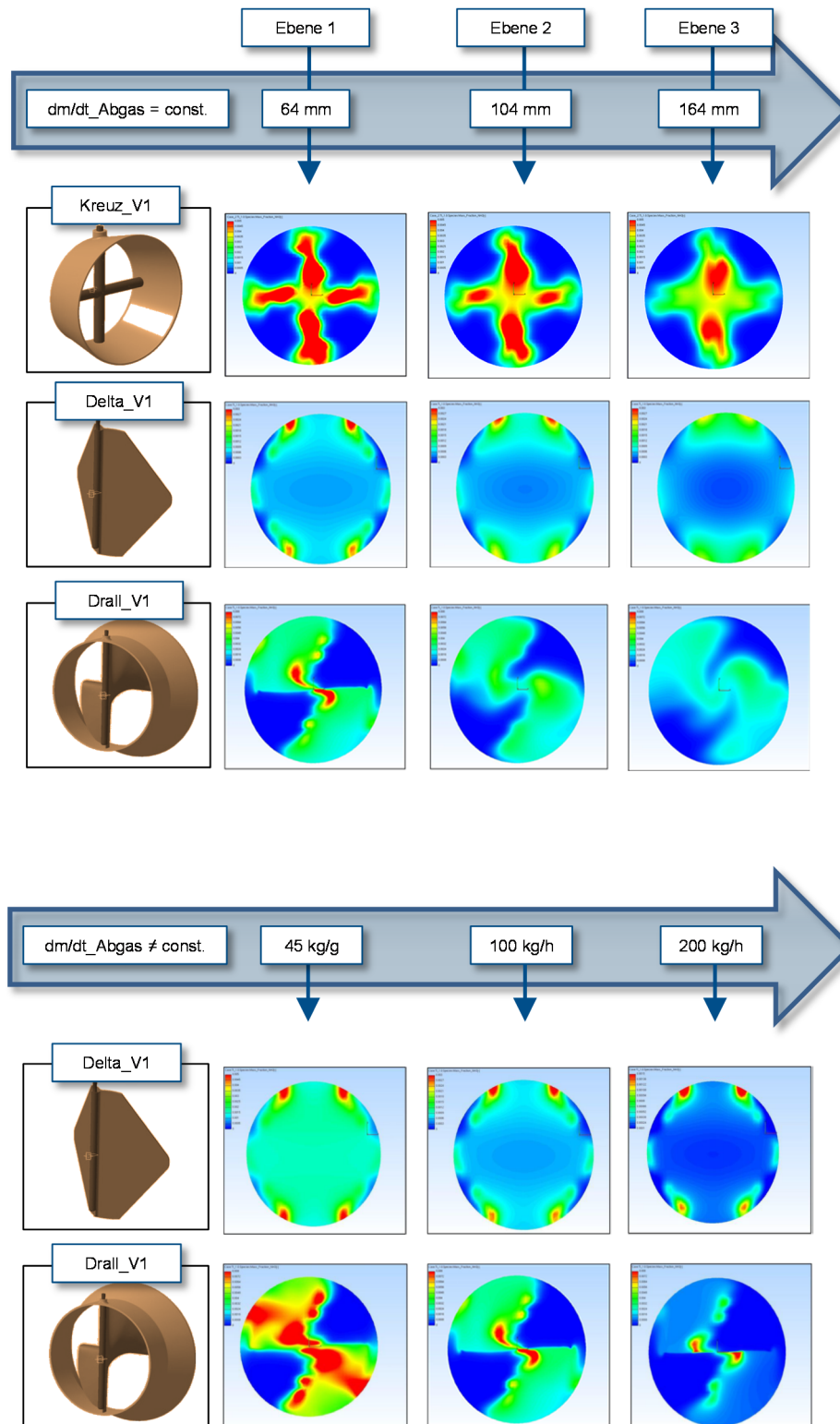


Abbildung 5-60: Ergebnis der CFD Simulation - NH_3 Gleichverteilung im Abgas (1. Evolutionsstufe)

2. Evolutionsstufe

Ausgehend von den Ergebnissen der CFD Simulation werden geometrische Änderungen an allen Formen vorgenommen (Abbildung 5-61). Diese zielen zum einen auf die Einbringung zusätzlicher Turbulenzen für eine bessere Gleichverteilung und zum anderen auf die Absenkung des Abgasgegendruckes ab.

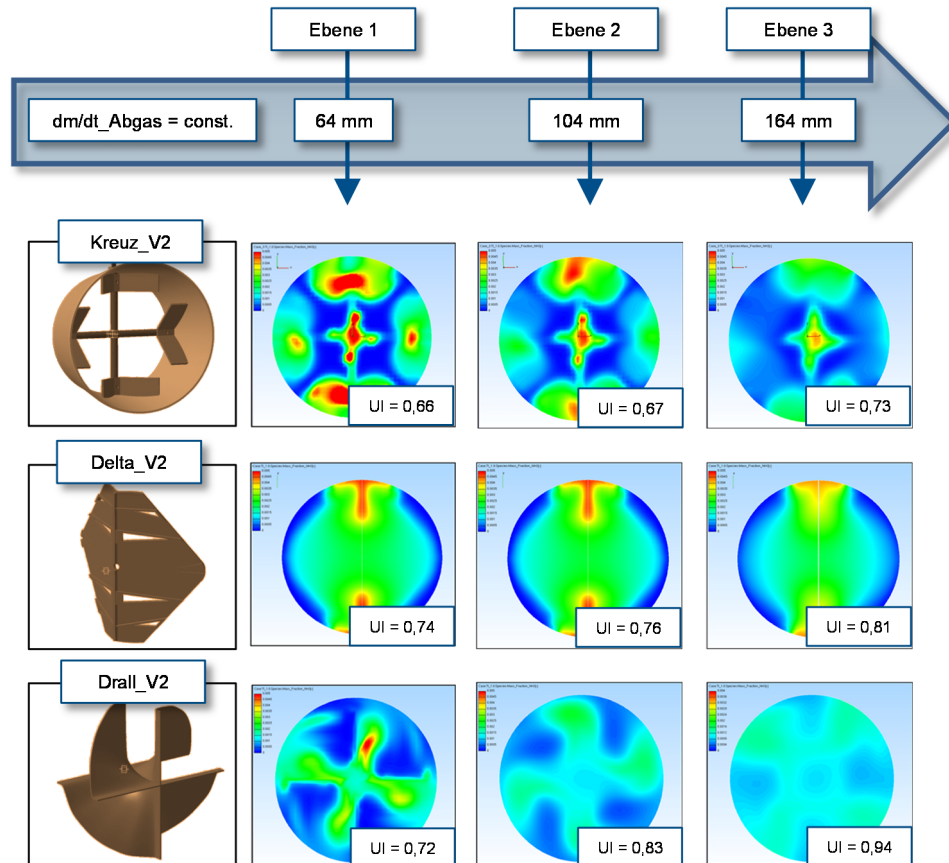


Abbildung 5-61: Ergebnis der CFD Simulation - NH_3 Gleichverteilung im Abgas (2. Evolutionsstufe)

Bei allen Varianten zeigt sich mit zunehmender Mischstrecke eine Verbesserung des UI. Gleichzeitig ergibt die Simulation, dass sich ein Gleichgewichtszustand einstellt. Jede Geometrieform hat somit ihre eigene optimale Mischstreckenlänge. Diese ist jedoch nicht fix, sondern von Faktoren, wie bspw. dem vorliegenden Abgasmassenstrom abhängig.

Die Ergebnisse der durchgeführten Simulationen zeigen, dass es erforderlich ist den Bewertungsraum zu erweitern. Neben den beiden Kriterien für den stationären Zustand (UI, Abgasgegendruck) wird noch ein weiteres Kriterium zur Beurteilung der Dynamik hinzugefügt. Dies ist der Tatsache geschuldet, dass es sich bei der Reagenzdosierung um einen diskontinuierlichen Vorgang handelt. Somit ist es nicht nur wichtig, dass sich ein hoher UI einstellt, sondern auch dass dies in kürzester Zeit geschieht. Entsprechend den für die Simulation gewählten physikalischen Randbedingungen ergeben sich die in Tabelle 5-6 aufgeführten Latenzzeiten.

Tabelle 5-6: Latenzzeiten bis stabiler UI vorliegt

	45 kg/h (V1)	100 kg/h (V1/V2)	200 kg/h (V1)
Kreuz	-	0,35 s / 0,50 s	-
Delta	0,95 s	0,70 s / 0,70 s	0,40 s
Drall	0,40 s	0,20 s / 0,20 s	0,10 s
Trichter	0,50 s	0,45 s / 0,30 s	0,40 s

Tatsächlich muss dies in der Auslegung der Dosierstrategie für ein SCRF System mit berücksichtigt werden. Für ein UF SCR System ist dies vernachlässigbar, da durch die wesentlich längere Mischstrecke sich ein quasistationärer UI einstellt. Generell muss für ein SCRF System die Regelung der Dosierstrategie individuell appliziert sein und kann nicht von einem UF SCR System übernommen werden. An dieser Stelle zeichnet sich jedoch ein Zielkonflikt in der Applikation ab. Auf der einen Seite empfiehlt sich aus Gründen der diskutierten Dynamikeffekte des UI längere Dosierphasen unabhängig des Motorbetriebspunktes vorzusehen, um bspw. die NH_3 Speicherfähigkeit des SCRF Katalysators auszunutzen. Auf der anderen Seite ist bedingt durch das höhere Betriebstemperaturniveau und die generell geringere NH_3 Speicherfähigkeit eines SCRF Katalysators gegenüber einem SCR Katalysator das NH_3 Speichervermögen reduziert (vgl. Kapitel 5.5.2.1). Dieser Umstand würde wiederum eine situationsangepasste motorbetriebspunktabhängige Reagenzdosierng erfordern, um auf diese Weise unabhängiger von einer NH_3 Speicherung zu sein. Der Vorteil wäre zudem, dass bei einem raschen Anstieg des Lastprofils und dem damit verbundenen schnellen Anstieg der Katalysatortemperatur ein NH_3 Schlupf besser zu kontrollieren wäre. Letztlich haben beide Auslegungskonzepte für sich ihre Vorteile, aber das Applikationsziel muss ein Kompromiss sein - zumal in dieser Arbeit der Vorteil einer NH_3 Vorseicherung, gerade bei einem Motorkaltstart, bereits nachgewiesen wurde.

Aus der Summe der gewonnenen Erkenntnisse lässt sich mittels der drei definierten Kriterien eine Bewertung der untersuchten Geometrien vornehmen. Dazu wird ein Bewertungskatalog erstellt, um den Kriterien und den Messergebnissen eine Gewichtung zuzuteilen. In der graphischen Aufbereitung in Form eines Kiviat-Diagrammes (Abbildung 5-62) lassen sich die Vor- und Nachteile der einzelnen Geometrien ablesen.

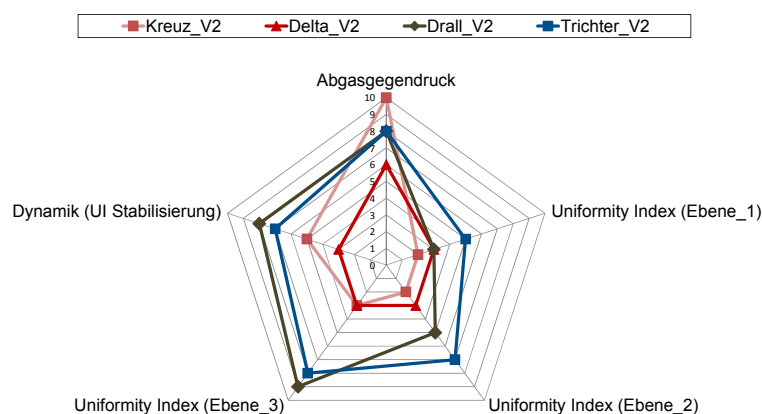


Abbildung 5-62: Kiviat-Diagramm zur Bewertung der untersuchten Geometrien

Der Deltamischer und vor allem der Kreuzmischer können zwar in einzelnen Kategorien überzeugen, fallen aber in der Gesamtbetrachtung ab und werden daher im weiteren Entwicklungsprozess nicht mehr berücksichtigt. Im direkten Vergleich zwischen dem Drallelement und der Trichterkombination liefern beide in allen Kategorien ähnlich gute Ergebnisse. Letztendlich geht als vielversprechendste Geometrieform aus dem durchgeführten NH_3 Dosiermodul Benchmarking die Trichterkombination hervor. Der ausschlaggebende Grund ist, dass mit dieser Variante der bessere UI in der Ebene 1 erreicht wird. Die Entscheidungsfindung basiert auf rein technischen Aspekten und der wirtschaftliche Faktor ist an dieser Stelle ausgeblendet. Jedoch erscheint die Trichterkombination fertigungstechnisch die einfachere Geometrieform und somit auch die kostengünstigere zu sein.

Für den Anwendungsfall in einem SCRF System gemäß Abbildung 5-58 werden zwei Dosiermodule zur gasförmigen und flüssigen Reagenzdosierung miteinander verglichen. Das Dosiermodul für Ad-Blue® ist in Anlehnung an die Geometrie aus Abbildung 2-17 gestaltet.

Die Messungen werden am Strömungs- und Motorprüfstand durchgeführt.

Strömungsprüfstand

Gegendruck

Als erstes Kriterium wird der Gegendruck für beide Dosiermodule ermittelt (Abbildung 5-63). Der gemessene maximale Absolutwert für das NH₃ Dosiermodul kann bei einem Luftmassenstrom von 400 kg/h zu 10 mbar bestimmt werden. Zur Relation: Der maximale Abgasmassenstrom des Prüfstandsmotors liegt im FTP72 bei 300 kg/h und im CAD/C bei 450 kg/h. Dagegen weist der Gegendruckverlauf des AdBlue® Dosiermoduls einen wesentlich steileren Gradienten auf. Zwischen den beiden Gegendruckverläufen der Dosiermodule lässt sich näherungsweise der Faktor 4 als Beziehung setzen. Damit ergibt sich ein Δp von 30 mbar bei einem Luftmassenstrom von 400 kg/h. Wird hieraus die pneumatische Leistung gemäß Formel (5-17) bestimmt liegt diese bei etwa 0,3 kW. Das entspricht der Leistung, die zusätzlich vom Motor aufgebracht werden müsste.

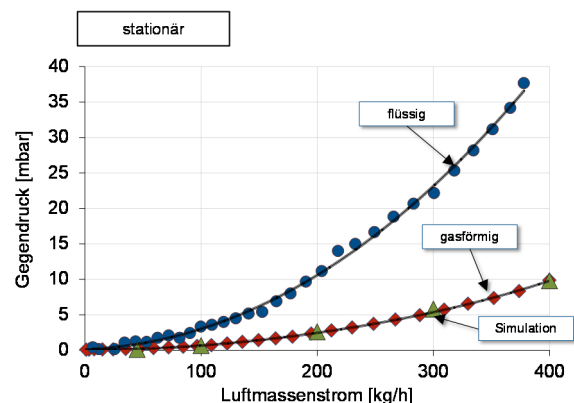


Abbildung 5-63: Gegendruck der beiden Dosiermodule, Simulation und Versuch

Pneumatische Leistung

$$P = \dot{V} \cdot \Delta p$$

(5-17)

Der berechnete Wert gilt für die Umgebungsbedingungen der Luft bei 1013 mbar und 20 °C. Unter motorischen Bedingungen würde er sich zusätzlich mit der Abgastemperatur ändern. Aber er wäre stets größer als bei Umgebungsbedingungen.

Parallel zu der messtechnischen Bestimmung des Gegendruckes wird dieser für das NH₃ Dosiermodul zusätzlich in der CFD Simulation bestimmt. Hierbei korreliert der in der Messung ermittelte luftmassenstromabhängige Gegendruck des NH₃ Dosiermoduls sehr gut mit dem aus der Simulation gewonnenen Ergebnis. Die maximale absolute Abweichung beträgt in dem vermessenen Intervall $\Delta p = 0,6$ mbar. Generell liegt die relative Abweichung bei weniger als 10 %.

Motorprüfstand

Stationäre Systembetrachtung

Im Gegensatz zu den Messungen am Strömungsprüfstand werden die Messungen am Motorprüfstand nicht mit Luft bei Raumtemperatur, sondern mit warmem Abgas durchgeführt. Ebenso unterscheidet sich die Einbaulage des Dosiermoduls. Die Hauptströmungsrichtung am Strömungsprüfstand ist horizontal. Am Motorprüfstand ist sie dagegen um annähernd 90° gedreht und somit fast vertikal. Der Einfluss der Schwerkraft auf die Strömung von Abgas und Reagenz kann bei dieser Montageposition vernachlässigt werden.

Im ersten Schritt soll die DeNO_x Performance an Hand von zwei Ergebnissen aus der stationären NO_x Konvertierungsmessung mit einem SCR Katalysator dargestellt werden (Abbildung 5-64). Durch die Veränderung des Motorbetriebspunktes unterscheiden sich die Temperaturen. Ebenso sind die Reagenzmassenströme bei vergleichbaren Abgasmassenströmen unterschiedlich. Der Grund hierfür ist die (De-)Aktivierung des AGR Ventils.

Am Beispiel der beiden Verläufe für die NO_x Konzentrationen hinter dem SCR Katalysator lassen sich die Strömungs- und Dynamikunterschiede aufzeigen. Im Diagramm der niedrigen Temperatur (Abbildung 5-64, links) liegt ein großes Massenstromverhältnis von NH₃/Abgas (ψ) vor. Für das NH₃ Dosiermodul bedeutet dies, dass alle drei Düsenkonfigurationen aktiv sind und NH₃ dosieren. Des Weiteren zeigt der direkte Vergleich den Nachteil der AdBlue® Dosierung gegenüber der gasförmigen NH₃ Dosierung in Bezug auf die Dynamik der sich einstellenden DeNO_x Performance. Während die NH₃

Dosierung bereits nach Sekunden einen stationären Zustand erreicht, dauert dies bei der flüssigen Dosierung mehrere Minuten. Die sehr geringe Abgastemperatur verlangsamt die Reaktionen der Hydro- und Thermolyse zur Freisetzung des NH_3 ganz erheblich. Nachdem beide Varianten der Dosiermodule ihren stationären Zustand erreicht haben ist die NO_x Konvertierungsrate jedoch gleich.

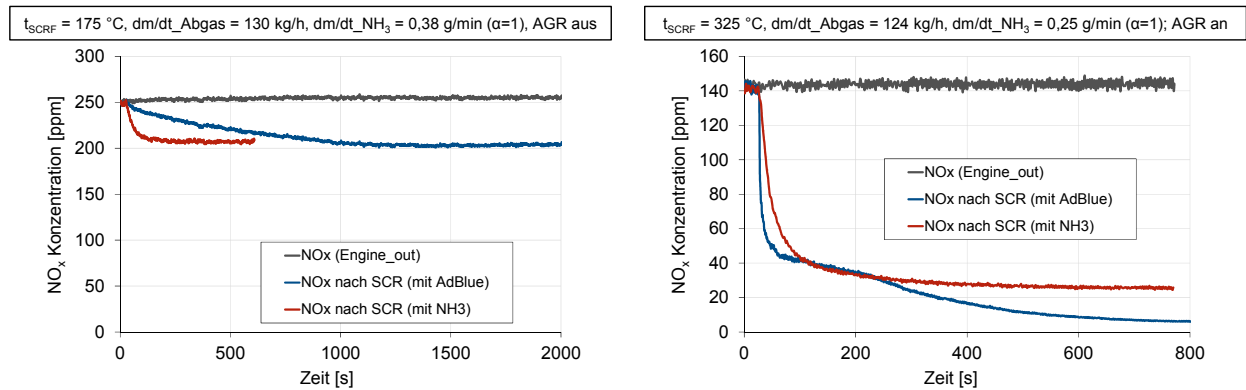


Abbildung 5-64: Vergleich der DeNO_x Performance in zwei unterschiedlichen Betriebspunkten für NH₃ Dosiermodul und AdBlue® Dosiermodul

Die Verläufe in Abbildung 5-64 rechts, zeigen in Ansätzen einen qualitativ anderen Verlauf. Zunächst verhält sich die NO_x Konvertierung bei NH_3 Dosierung wie erwartet. Es wird ein schneller stationärer Zustand erreicht. Dieser ist aber weitaus schlechter als mit der AdBlue® Dosierung. Die Begründung hierfür beruht auf der Tatsache des jetzt geringeren Massenstromverhältnisses von NH_3 /Abgas (ψ). Hier bestätigt sich ein bereits aus der CFD Simulation bekannter Strömungseffekt in den Messungen am Motorprüfstand. Ist durch einen zu geringen NH_3 Massenstrom für die Dosierung der Innendruck in der Düse zu gering, kommt es bei einem hohen Abgasmassenstrom zu einem negativen Druckgefälle. In Konsequenz kann Abgas über die Düsenkonfiguration A in das Innere der Düse strömen (Abbildung 5-65). Dieser Strömungseffekt führt zu einer Deaktivierung der Düsenkonfiguration A. Für die Verteilung des NH_3 in der Strömung bedeutet dies, dass die Randzonen des Katalysators nicht versorgt werden und somit das vorhandene DeNO_x Potential des Katalysators nicht vollends genutzt werden kann. In dem durchgeführten Optimierungsprozess zur Auslegung der Geometrie des NH_3 Dosiermoduls wurde dies bestmöglich berücksichtigt. Die Messungen zeigen jedoch, dass es nicht für absolut jeden Betriebszustand gewährleistet werden kann. In dem beschriebenen Strömungsverhalten liegt der entscheidende Unterschied in der Multi-Point-Injektion des NH_3 Dosiermoduls mit mehreren verteilten Austrittspunkten und der Single-Point-Injektion des AdBlue® Dosiermoduls mit nur einem Austrittspunkt. Praktikable Ansätze für Gegenmaßnahmen wären beispielsweise die Steigerung des Versorgungsdruckes. Im Falle des gasförmigen NH_3 Dosiersystems (siehe Kapitel 5.1.1) liegt dieser bei nur 2,5 bar und nimmt darüber hinaus mit der Länge der Zuleitung entsprechend ab. Eine Erhöhung des Systemdruckes wäre mit zusätzlichem Energiebedarf und einer längeren Zeit bis zur Systembereitschaft nach einem Systemstart verbunden. Ein weiterer Ansatz wäre die Änderung der Dosierstrategie, d.h. weg von der quasikontinuierlichen Dosierung hin zu einer quasidiskontinuierlichen Dosierung, bei der bewusst Dosierimpulse unterdrückt werden. Mit der Reduktion der Anzahl der Dosierimpulse wird dafür die Dosiermenge pro Dosierimpuls und somit der Dosierdruck gesteigert.

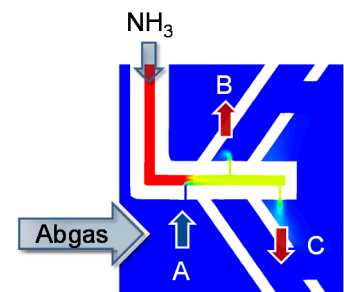


Abbildung 5-65: Deaktivierung der Düsenkonfiguration A des NH_3 Dosiermoduls

Transiente Systembetrachtung

In einem Stichversuch werden das Gegendruckverhalten, das Temperaturverhalten und die DeNO_x Performance am Beispiel eines FTP72 Fahrzyklus für beide Dosiermodule verglichen. Aus der stationären Vermessung am Strömungsprüfstand sind die Werte für den Gegendruck mit Luft bei Raumtemperatur bekannt. Zur vergleichenden Betrachtung werden am Motorprüfstand zwei identische Zyklen gefahren und die Differenz aus beiden Druckverläufen in Abbildung 5-66 dargestellt. Die Messergebnisse am Motorprüfstand mit warmem Abgas und transienten Massenströmen zeigen, dass die Übertragbarkeit von Strömungsprüfstand auf Motorprüfstand für die Ergebnisse der Gegendruckanalyse unter den vorhandenen Bedingungen gegeben ist. Mit dem konstruierten NH₃ Dosiermodul kann für das Lastprofil eines FTP72 und den darin auftretenden Abgasmassenströmen das Gegendruckniveau für den Spitzenwert um 30 mbar gegenüber dem AdBlue® Dosiermodul gesenkt werden.

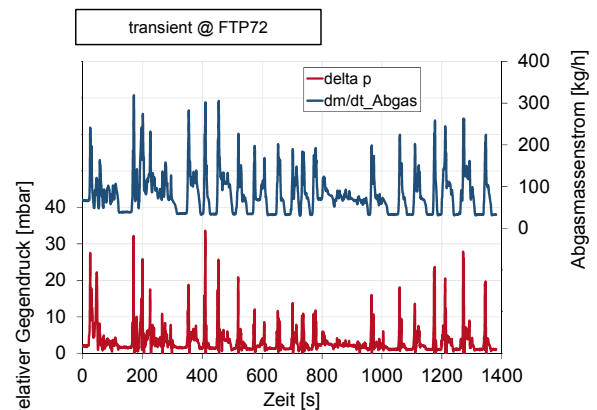


Abbildung 5-66: relativer Gegendruck im FTP72 zwischen NH₃ Dosiermodul und AdBlue® Dosiermodul

Ein weiterer Aspekt ist das Temperaturverhalten am Eintritt in den SCRf Katalysators während der Reagenzdosierung. Das Reagenz wird nicht vorgewärmt und mit Umgebungstemperatur dosiert. Somit führt insbesondere bei AdBlue® die Verdampfungsenthalpie zu einem Absinken der Abgastemperatur. Tatsächlich kann aber für die real auftretenden Temperatureinflüsse durch die Reagenzdosierung kein signifikanter Einfluss nachgewiesen werden. Entsprechend ist dies bei gasförmiger NH₃ Dosierung noch unkritischer, zumal eine geringere absolute Reagenzmasse (Massenfaktor NH₃/AdBlue® = 0,182) und somit eine geringere thermische Kapazität dem Abgas zugeführt wird.

Bezüglich der DeNO_x Performance sind mit Einsatz des AdBlue® Dosiermoduls bei Verwendung der Standardapplikation bessere NO_x Konvertierungsraten zu erzielen (Abbildung 5-67). Neben den verwendeten Dosiermodulen ist die Applikation des Messaufbaus, wie z.B. der verwendete SCRf Katalysator, für die Untersuchung stets dieselbe. Ebenso die für die Dosierstrategie genutzte open-loop α -Steuerung und die Initialtemperatur von 180 °C am SCRf Katalysatoreintritt für die Dosierfreigabe. Die Reagenzdosierung erfolgt somit immer zum selben Zeitpunkt innerhalb des Zyklus. Gleiches gilt auch für den messbaren Beginn der NO_x Konvertierung bei dem zuvor leeren SCRf Katalysator. Die Erklärung für die Performanceeinbuße bei Verwendung des NH₃ Dosiermoduls ist abermals in dem vorliegenden Massenstromverhältnis von NH₃/Abgas (ψ) zu sehen; ähnlich zu den Ergebnissen aus der stationären Untersuchung. Mit einem ψ von $1,2 \cdot 10^{-4}$ konnte hier keine Dosierung über alle Düsenkonfigurationen erzielt werden. Hingegen mit einem ψ von $1,75 \cdot 10^{-4}$ schon. Für den FTP72 berechnete sich der Mittelwert für ψ im Falle der open-loop α -Steuerung zu $0,93 \cdot 10^{-4}$.

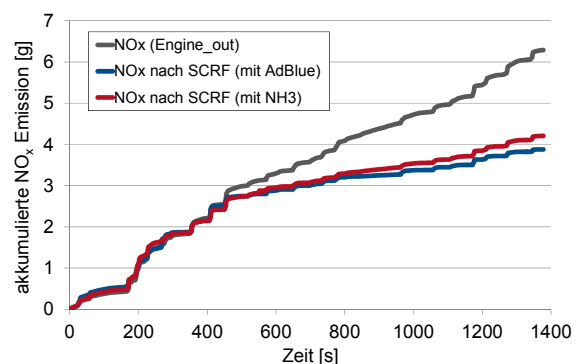


Abbildung 5-67: DeNO_x Performance im FTP72 mit NH₃ Düsenmodul und AdBlue® Düsenmodul

Resultierend aus den in Kapitel 5.4 beschriebenen Effekten und Ergebnissen ist dennoch mit Verwendung des NH₃ Dosiermoduls eine bessere DeNO_x Performance als mit dem AdBlue® Dosiermodul zu erwarten. Hierzu muss jedoch die NH₃ Dosierstrategie entsprechend dem im vorangegangenen Unterkapitel vorgestellten Ansatz umgesetzt und an die Anforderungen des NH₃ Dosiermoduls angepasst werden.

5.5.2 Parameterstudie zur Identifikation der Betriebseigenschaften eines SCR Systems

Nachdem die Einflüsse des Reagenzmediums auf die DeNO_x Performance für ein SCR System untersucht wurden, erfolgt im nächsten Schritt die Identifikation der Betriebseigenschaften. Diese dient dazu, mittels einer Parametervariation der Katalysatoreigenschaften die Auswirkungen auf die DeNO_x Performance zu quantifizieren. Die Messungen werden alle am Motorprüfstand durchgeführt. Das Messprogramm umfasst stationäre und transiente Untersuchungen. Alle verwendeten Katalysatoren haben eine Cu-Zeolith Beschichtung. Für die durchgeführten Messungen im transienten Zyklus werden die SCR bzw. SCRf Katalysatoren stets mit NH₃ vorbeladen. Die Menge an vorbeladenem NH₃ entspricht der zuvor in stationären Untersuchungen ermittelten NH₃ Speicherkapazität des Katalysators bei 300 °C. Die FTP72 Testzyklen werden stets bei Raumtemperatur mit kaltem Motor und kaltem Abgasnachbehandlungssystem gestartet. Der CADC wird hingegen aus dem Motorbetrieb heraus gestartet. Die Initialbedingung ist hierbei eine Abgastemperatur nach DOC von 250 °C. Die Temperatur hinter DOC wird direkt am Eingang des, je nach Konfiguration, nachgeschalteten DPF, SCR oder SCRf erfasst und dient im Folgenden als Referenztemperatur. Als Reagenzmedium wird für die Untersuchungen AdBlue® verwendet und als Dosierstrategie kommt die open-loop α -Steuerung mit $\alpha=1$ zum Einsatz. Auf eine zusätzliche Heat-Up Strategie wird zwecks der Vergleichbarkeit der Messergebnisse verzichtet. Das Referenzsystem stellt ein Unterboden SCR Katalysator dar. Dementsprechend wird der Wert für das Katalysatorvolumen und die spezifische Washcoatbeladung (WC) jeweils mit 100 % angenommen und für alle anderen Katalysatorkonfigurationen in Relation hierzu gesetzt.

5.5.2.1 Auswirkung der primären Einflussparameter

Einfluss des Volumens

Für den Vergleich stehen zwei CC SCR Katalysatoren mit unterschiedlichen Volumina und gleicher spezifischer Washcoatbeladung zur Verfügung. Eine dritte Variante resultiert aus der Reihenschaltung der beiden SCR Katalysatoren. Die Katalysatoren werden in motornaher Position anstelle des DPF eingebaut (Abbildung 5-68).

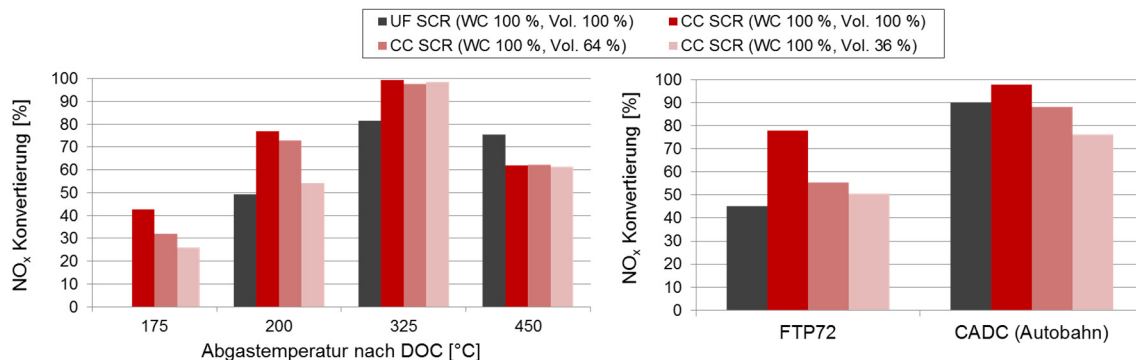


Abbildung 5-68: Einfluss des Katalysatorvolumens auf die DeNO_x Performance (links stationär, rechts transient)

Stationäre Systembetrachtung

Bei niedrigen Katalysatortemperaturen ist der Einfluss des Volumens am signifikantesten. Mit einem großen Katalysatorvolumen lässt sich die höchste NO_x Konvertierung erzielen. Durch das große Volumen und der damit verbundenen niedrigen Raumgeschwindigkeit im Katalysator, lässt sich der nachteilige Effekt der geringen Reaktionsgeschwindigkeit bei niedrigen Abgastemperaturen am besten kompensieren. Mit steigender Temperatur reduziert sich die Effizienzabhängigkeit vom Katalysatorvolumen. Für den untersuchten 325 °C Punkt ist das Ergebnis ausgeglichen. Gleiches gilt für den 450 °C Punkt. Hier ist jedoch in Bezug auf den einstellbaren Reagenzmassenstrom das Limit des Dosiersystems erreicht. Das Verhalten des UF SCR ist damit zu erklären, dass hier die tatsächliche Katalysatortemperatur trotz identischer Motorbetriebspunkte durch die Unterbodenposition stets geringer ist (CC 200 °C → UF 183 °C; CC 325 °C → UF 284 °C; CC 450 °C → 403 °C). Aus diesem Zusammenhang

lässt sich ableiten, dass aus Sicht der Emissionsminderung zur Gewährleistung einer NO_x Reduzierung über das gesamte Motorkennfeld idealerweise ein CC SCR für die Kaltphasen und den Niedriglastbereich benötigt wird und ein UF SCR System für den Vollastbereich. Dies ist jedoch nicht repräsentativ für den aktuellen Entwicklungstrend.

Transiente Systembetrachtung

Bei einem kaltgestarteten Zyklus, wie den FTP72, kommt die zuvor dargestellte Abhängigkeit von der Temperatur und dem Katalysatorvolumen besonders zum Tragen. Bis zum Erreichen der Light-Off-Temperatur ist das Systemverhalten unabhängig vom Katalysatorvolumen. Danach wirkt sich die unterschiedliche Menge an vorgespeichertem NH₃ aus (vgl. Abbildung 5-45). Mit dem großen Volumen und der großen NH₃ Menge ist es möglich NO_x Peaks, resultierend aus Lastwechsel mit großen Gradienten, zu kompensieren. Mit den kleinen SCR Katalysatoren ist dies nicht möglich. Für den hochdynamischen Autobahnanteil des CADC ist das Temperaturprofil von Anbeginn für ein CC SCR System ideal. Hier überwiegt jedoch der Effekt der Raumgeschwindigkeit (vgl. Abbildung 5-42). Somit ist die DeNO_x Performance mit kleiner werdenden Volumina abnehmend.

Als Zwischenfazit dieser Teiluntersuchung ergibt sich, dass ein großes SCR Katalysatorvolumen sowohl im stationären als auch im transienten Motorbetrieb eine Verbesserung der DeNO_x Performance bewirkt.

Gegendruck

Ein direkter technischer Nachteil, der mit der Größe des Katalysatorvolumens verbunden ist, ist das Gegendruckdruckniveau. Dieses steigt progressiv mit dem Volumen des Katalysators an (Abbildung 5-69, links).

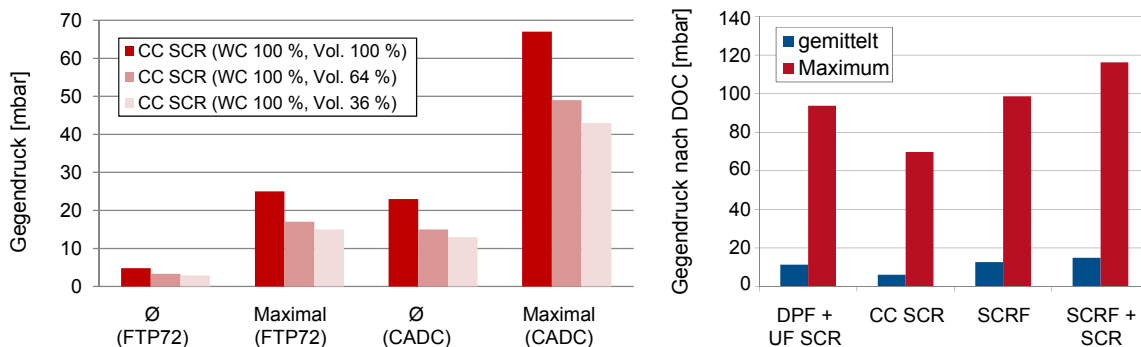


Abbildung 5-69: Gegendruckniveau im transienten Testzyklus für unterschiedliche Katalysatorkonfigurationen

Neben dem Katalysatorvolumen ist das Gegendruckniveau auch noch von der Art des Substrates abhängig. So ergibt sich für ein Wall-Flow Substrat gegenüber einem Honeycomb Substrat ein höherer Gegendruck. Die Relationen zueinander sind in Abbildung 5-69 rechts, am Beispiel eines FTP72 dargestellt. Der hier aufgetragene Gegendruck stellt den Gegendruck des gesamten Abgasnachbehandlungssystems nach DOC dar, also auch mit Mischelement. Wird an Stelle des DPF ein zum UF SCR Katalysator volumenäquivalenter CC SCR verbaut, reduziert sich der Gegendruck. Ganz anders verhält es sich bei einem SCRF Katalysator mit einem Volumenäquivalent zum DPF. Hier steigt der gemessene Druck unter Einfluss des aufgetragenen Washcoats im Mittel um 12 % und im Peakwert um 5 %. Wird dem SCRF Katalysator ein SCR Brick nachgeschaltet, um auf das Volumenäquivalent zum UF SCR System zu kommen, steigt der Gegendruck im Mittel um 32 % und im Peakwert um 24 %.

Einfluss des Washcoats

Der Washcoat eines Katalysators dient neben seiner Funktionsaufgabe als Trägersubstanz für die katalytisch aktiven Komponenten auch dazu, die Größe der katalytisch aktiven Oberfläche zu bestimmen. Die für die Untersuchung verwendeten vier SCR Katalysatoren haben alle das identische Volumen von 64 % bezogen auf das Referenzvolumen. Die spezifische Washcoatmenge beträgt 40, 60, 80 und 100 % der Referenzmenge.

Stationäre Systembetrachtung

Es kann nachgewiesen werden, dass eine hohe Washcoatbeladung eine positive Wirkung auf die NO_x Konvertierung hat (Abbildung 5-70, links). Insbesondere bei niedrigen Temperaturen (175 °C, 200 °C) ist der Effekt sehr ausgeprägt. Ursache ist auch hier die geringe Reaktionsgeschwindigkeit. Für eine Steigerung der Effizienz ist der Katalysator somit auf eine gewisse Washcoatmenge neben dem Volumen angewiesen. Mit steigender Temperatur nimmt auch hier die Abhängigkeit ab und die Washcoatmenge stellt keine signifikante Einflussgröße mehr für die De NO_x Performance dar.

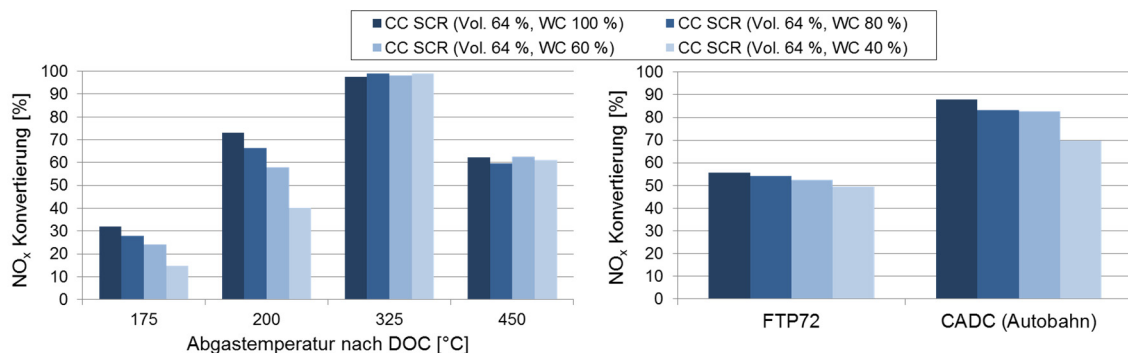


Abbildung 5-70: Einfluss der Washcoatbeladung auf die De NO_x Performance (links stationär, rechts transient)

Transiente Systembetrachtung

Durch die Volumenäquivalenz der Katalysatoren haben sie annähernd die gleiche Masse. Dies führt dazu, dass nicht nur die Light-Off-Temperatur am Eintritt des Katalysators nach derselben Zeit erreicht wird, sondern auch aufgrund der vergleichbaren thermischen Kapazität der Katalysatoren das Durchheizen nahezu identisch verläuft. Die sich für den kaltgestarteten FTP72 ergebenden geringen Unterschiede belegen, dass die De NO_x Performance hier vorwiegend durch die zuvor eingespeicherte Menge an NH_3 bestimmt wird. Im direkten Vergleich zu dem Ergebnis aus der Volumenvariation kann als Fazit gefolgert werden, dass die Washcoatmenge einen geringeren Einfluss auf die De NO_x Performance hat als das Volumen. Trotzdem darf sie nicht zu gering gewählt werden, da insbesondere in den Phasen starker Beschleunigungen durch das geringere NH_3 Speichervermögen bei geringer Washcoatmenge NH_3 Schupf leichter auftreten kann.

NH_3 Speicherkapazität

Die Fähigkeit der NH_3 Absorption ist für SCR und SCRF Katalysatoren charakteristisch. Im Vergleich unterschiedlicher Substrate und Washcoatbeschichtungen zeigen sich aber große Unterschiede. Das Unterboden SCR System als Referenz in Abbildung 5-71 weist die typische Ausprägung für das Speicherverhalten aus. Mit steigender Katalysatortemperatur nimmt die NH_3 Speicherkapazität ab und es kommt zur Desorption des NH_3 .

Im direkten Vergleich zu dem Referenzsystem, dem UF SCR, werden zwei unterschiedliche SCRF Katalysatoren betrachtet. Diese haben eine wesentlich geringe

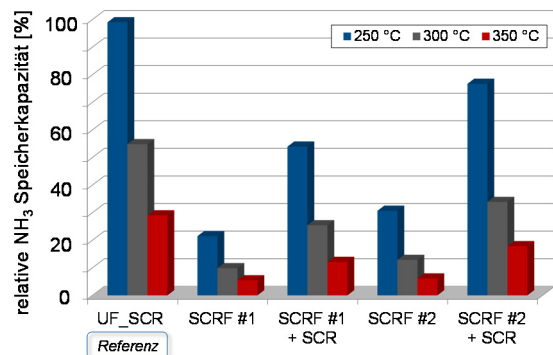


Abbildung 5-71: NH_3 Speicherkapazität unterschiedlicher Katalysatorkonfigurationen

re NH_3 Speicherfähigkeit, jedoch mit der gleichen Charakteristik. Auch bei Volumenäquivalenz mit nachgeschaltetem SCR Brick erreichen diese nicht die Werte des Referenzsystems. Prinzipiell ist daher eine hohe NH_3 Speicherfähigkeit anzustreben. Dies hat primär die folgenden Gründe: Zum einen ist es möglich das System generell mit einer größeren Menge an eingespeichertem NH_3 zu betreiben. Der Vorteil hierbei ist, dass die Reaktionen zur NO_x Konvertierung mit dem eingespeicherten NH_3 stattfinden können. Auf diese Weise verfügt das System über eine Art Puffer und die Anforderungen an die Dynamik des Dosiersystems sind geringer. Zum anderen kann bei einem plötzlichen Wunsch des Fahrers zur Steigerung des Lastprofils der NH_3 Schlupf durch die ansteigenden Temperaturen besser abgefangen werden. Und letztlich kann die NO_x Konvertierung des Katalysators nach einem Motorkaltstart durch die erhöhte NH_3 Vorbeladung noch vor Erreichen der Dosierfreigabetemperatur für das Reagenz einsetzen. Dies hat wiederum einen positiven Einfluss auf die De NO_x Performance des Gesamtsystems.

In Kapitel 5.4 wurde nachgewiesen, dass zwischen der NH_3 Vorspeicherung und der erzielten De NO_x Performance für einen kaltgestarteten Testzyklus ein direkter Zusammenhang besteht. Für die Quantifizierung der möglichen NH_3 Speicherkapazität eines SCR(F) Katalysators über seine absolute Washcoatbeladung kann eine progressive Abhängigkeit hergestellt werden (Abbildung 5-72). Dabei gilt zu beachten, dass die für die Katalysatoren aufgeführten Werte für Volumen (Vol.) und für die spezifische Washcoatbeladung (WC) jeweils den relativen Anteil bezogen auf den UF SCR Katalysator angeben.

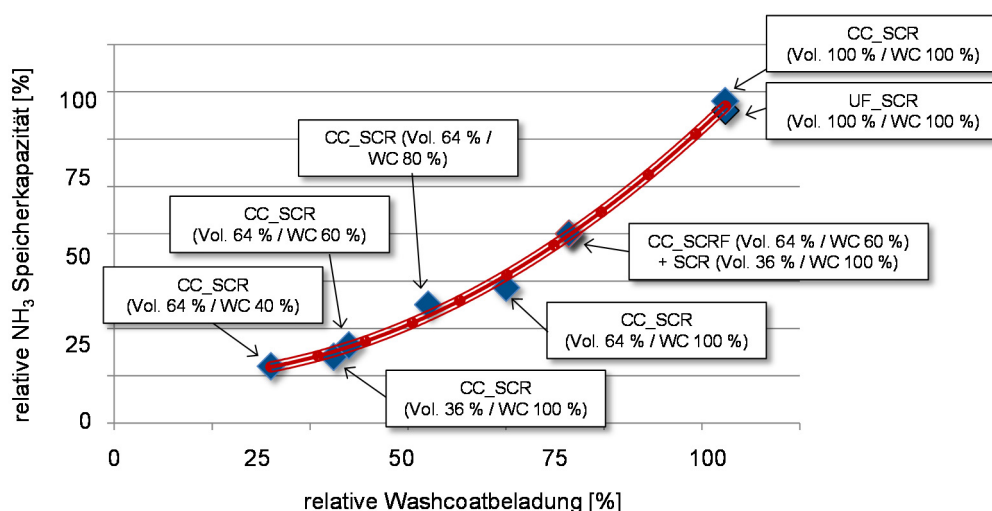


Abbildung 5-72: Relation zwischen Washcoatbeladung und NH_3 Speicherfähigkeit (@ 300 °C)

Einfluss des Substrates

Hierzu wird das Substrat des SCR Katalysators mit offener Wabenstruktur (Honeycomb) und Oberflächenkatalyse mit dem SCRF Katalysator mit Wall-Flow Substrat und Wanddurchdringungskatalyse verglichen. Zur Veranschaulichung der Strömung von Abgas und Reagenz sei auf Abbildung 5-57 verwiesen. Die Untersuchung erfolgt in zwei Phasen. In der ersten Phase wird die reine Auswirkung des Substrates analysiert. Hierzu werden zwei volumen- und washcoatäquivalente SCR und SCRF Katalysatoren miteinander verglichen (Abbildung 5-73). In der zweiten Phase werden die bisherigen Katalysatoren um einen zusätzlichen SCR Katalysator mit einem kleineren Volumen aber dafür einer höheren Washcoatbeladung ergänzt. Dieser zusätzliche SCR Katalysator wird in Reihe geschaltet. Außerdem wird auch die umgekehrte Anordnung von SCR und SCRF untersucht.

Stationäre & Transiente Systembetrachtung

Im direkten Vergleich von SCR zu SCRF Katalysator zeigt sich sowohl in den stationären Motorbetriebspunkten als auch in den transienten Fahrzyklen ein signifikanter Unterschied in der De NO_x Per-

formance. Der SCRF Katalysator ist in allen Fällen dem SCR Katalysator unterlegen. Ein Erklärungsmodell hierfür basiert auf der Annahme, dass die katalytische Beschichtung beim SCR Katalysator längs der Kanalwand aufgetragen ist und somit das NO_x und das NH_3 die gesamte Länge des Katalysators für die Reaktion zur Verfügung haben. Dagegen ist beim SCRF Katalysator die katalytische Beschichtung größtenteils in der Wand. Somit verbleibt für die Reaktion von NO_x mit NH_3 lediglich die Zeit und die Strecke beim Durchströmen der Kanalwand (Abbildung 5-74).

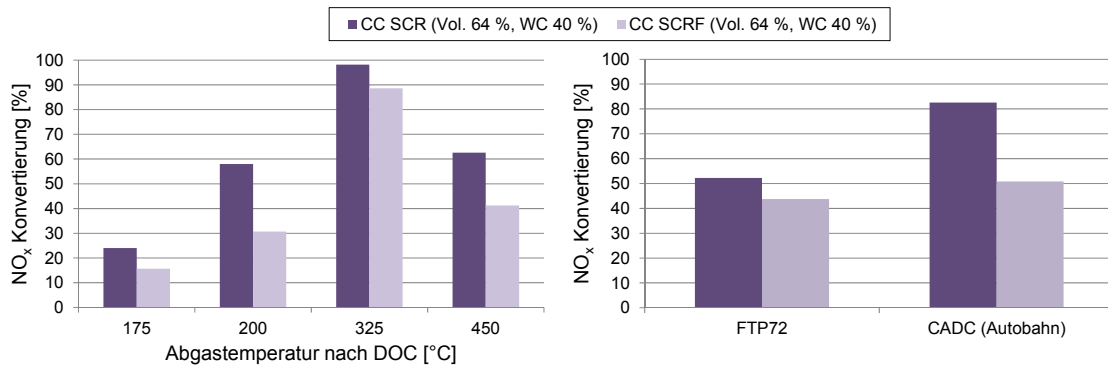


Abbildung 5-73: Einfluss des Substrates auf die DeNO_x Performance

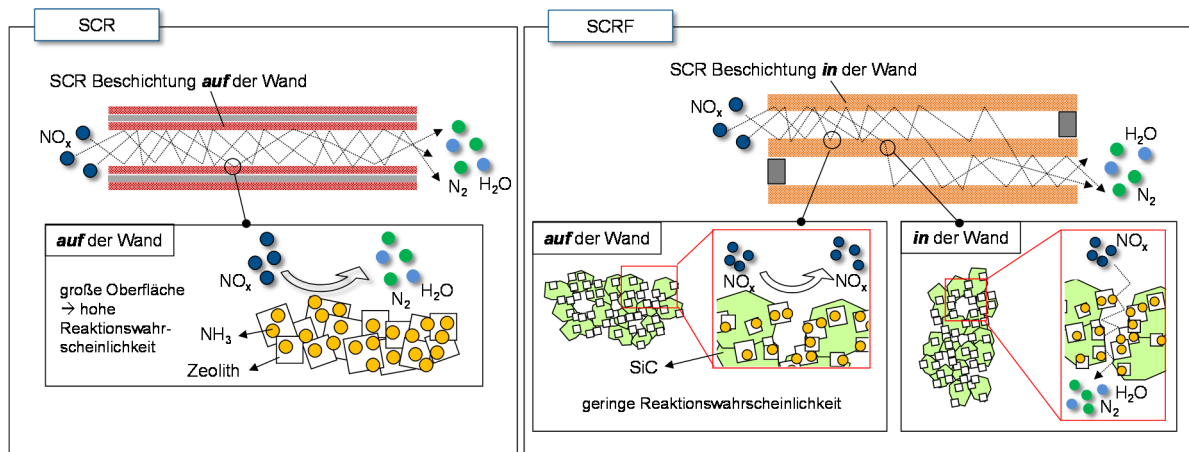


Abbildung 5-74: Erklärungsmodell für die unterschiedliche DeNO_x Performance von SCR und SCRF

Wird der SCRF Katalysator durch einen zusätzlichen SCR Katalysator ergänzt ist das Layout entscheidend. Positioniert man den SCRF vor dem SCR Katalysator, kann für die stationären Betriebspunkte eine bessere DeNO_x Performance ermittelt werden, als bei umgekehrter Anordnung der Katalysatoren. Ein Grund hierfür liegt in der Eigenschaft des SCRF Katalysators das Reagenz mit dem Abgas, durch die Wall-Flow-Strömung, zusätzlich zu vermischen. Nachweislich lässt sich mit einem SCRF ein höherer UI erzielen als mit einem SCR Katalysator (vgl. Abbildung 5-57). Somit erreicht den nachgeschalteten SCR Katalysator ein homogeneres Strömungsprofil aus Abgas und NH_3 . Für die DeNO_x Performance im transienten Fahrzyklus dreht sich das Ergebnis jedoch um. Zwar bleiben die physikalischen Effekte dieselben, aber ihre Gewichtung und somit ihr Einfluss verschiebt sich. In diesem Fall ist es besser, den SCR Katalysator in der vorderen Position zu verbauen. Dies hat den Vorteil, dass er durch seine geringere thermische Masse schneller Temperatur aufnimmt und so schneller seine Light-Off-Temperatur erreicht. Ein weiterer Vorteil der damit verbunden ist, ist die höhere spezifische Washcoatbeladung und damit die höhere NH_3 Speicherkapazität. Diese Eigenschaften führen in ihrer Summe zu der besseren DeNO_x Performance im kaltgestarteten Fahrzyklus [116].

5.5.2.2 Ergebnisdarstellung der DeNO_x Performance

Fazit der Parameterstudie zu den primären und sekundären Einflussfaktoren

- Das **Katalysatorvolumen** kann als der Einflussfaktor mit der größten Auswirkung auf die sich einstellende DeNO_x Performance identifiziert werden. Dies gilt sowohl für den stationären als auch für den transienten Betrieb. Die Vorteile eines größeren Katalysatorvolumens sind die größere NH₃ Speicherfähigkeit und die geringere Raumgeschwindigkeit in Verbindung mit der größeren aktiven Oberfläche, was wiederum den Reaktionsmechanismus der NO_x Konvertierung unterstützt.
- Der Einfluss der Menge an **Washcoatbeladung** ist gegenüber dem Volumen von untergeordneter Relevanz. So kann eine reduzierte Washcoatmenge auf dem SCRF Katalysator bis zu einem bestimmten Grad durch die Volumenvergrößerung in Verbindung mit einem zusätzlichen SCR Katalysator kompensiert werden [116].
- In Bezug auf das **Substrat** ist die DeNO_x Performance vom Betriebsmodus abhängig. Für den stationären Betrieb gilt: Erst SCRF dann SCR Katalysator. Durch die Wall-Flow Strömung kommt es zu einer zusätzlichen Vermischung des NH₃ mit gesteigertem Gleichverteilungsindex (UI). Hingegen für den transienten Betrieb, insbesondere für einen Kaltstartzyklus gilt: Erst SCR dann SCRF Katalysator. Hier ist der Vorteil der geringeren thermischen Masse und der höheren NH₃ Speicherfähigkeit für die DeNO_x Performance entscheidend [116].

Zyklusergebnis für den Vergleich von UF SCR vs. SCRF

Nachdem im Detail die primären Einflussparameter und ihre Auswirkungen auf die DeNO_x Performance im vorangegangenen Abschnitt diskutiert wurden, soll zum Abschluss eine globale Betrachtung mittels mehrerer Stichversuche erfolgen. Hierzu werden jeweils die Grundvarianten für die Katalysatoren verwendet. Als Reagenz wird AdBlue® dosiert. Daher wird für das CC SCR(F) System das Dosiermodul für flüssiges Reagenz genutzt und für das UF SCR System das Flügelmischelement (vgl. Abbildung 5-22). Als Dosierstrategie kommt die open-loop α -Steuerung mit $\alpha=1$ zur Anwendung. Die Dosierfreigabetemperatur ist gemäß dem in Kapitel 5.3.2 vorgestellten methodischen Applikationsansatz für die Dosierstrategie auf 150 °C definiert.

ohne NH₃ Vorbeladung

Im direkten Vergleich eines Unterboden (UF) SCR Systems zu einem motornahen (CC) SCRF Systems lassen sich die Unterschiede in der DeNO_x Performance aufzeigen; speziell in der akkumulierten Darstellung der NO_x Emissionen für die Motorrohmissionen und die NO_x Emissionen jeweils hinter den Katalysatoren. Die Katalysatoren unterscheiden sich in ihrem Volumen (Vol_{SCR} 100 %, Vol_{SCRF} 64 %). Der SCRF Katalysator ist volumenäquivalent zum originalen DPF des Motors am Prüfstand, den er ersetzt.

Die relative DeNO_x Performance kann für die Konfiguration im untersuchten Fall bei Verwendung des CC SCRF Katalysators gegenüber dem UF SCR Katalysator nahezu verdoppelt werden (Abbildung 5-75). Erklären lässt sich dies wie folgt: Letztlich ist die Temperatur der entscheidende Faktor für dieses Messergebnis. Denn im Temperaturverlauf zeigt sich, dass der CC SCRF Katalysator seine Light-Off-Temperatur und letztlich die Dosierfreigabetemperatur früher erreicht als der UF SCR Katalysator. Dies sind die entscheidenden Faktoren. Somit steht dem CC SCRF System für die NO_x Konvertierung, gerade in der für die Emissionen entscheidenden Kaltstartphase, 12 % mehr an Zykluszeit zur Verfügung. Nach Einsetzen der NO_x Konvertierungsaktivität sind die Gradienten für die akkumulierten NO_x Emissionen, jeweils hinter den beiden Katalysatoren, sehr ähnlich. Es stellt sich quasi ein Effizienzgleichgewicht ein. Zwischen den zuvor untersuchten Einflussparametern muss es also zu Kompensationseffekten kommen. Der Volumennachteil des CC SCRF wird größtenteils durch den Temperaturvorteil wieder ausgeglichen. Über den Zyklus gesehen liegt das Temperaturniveau beim CC SCRF etwa 30 °C höher als beim UF SCR.

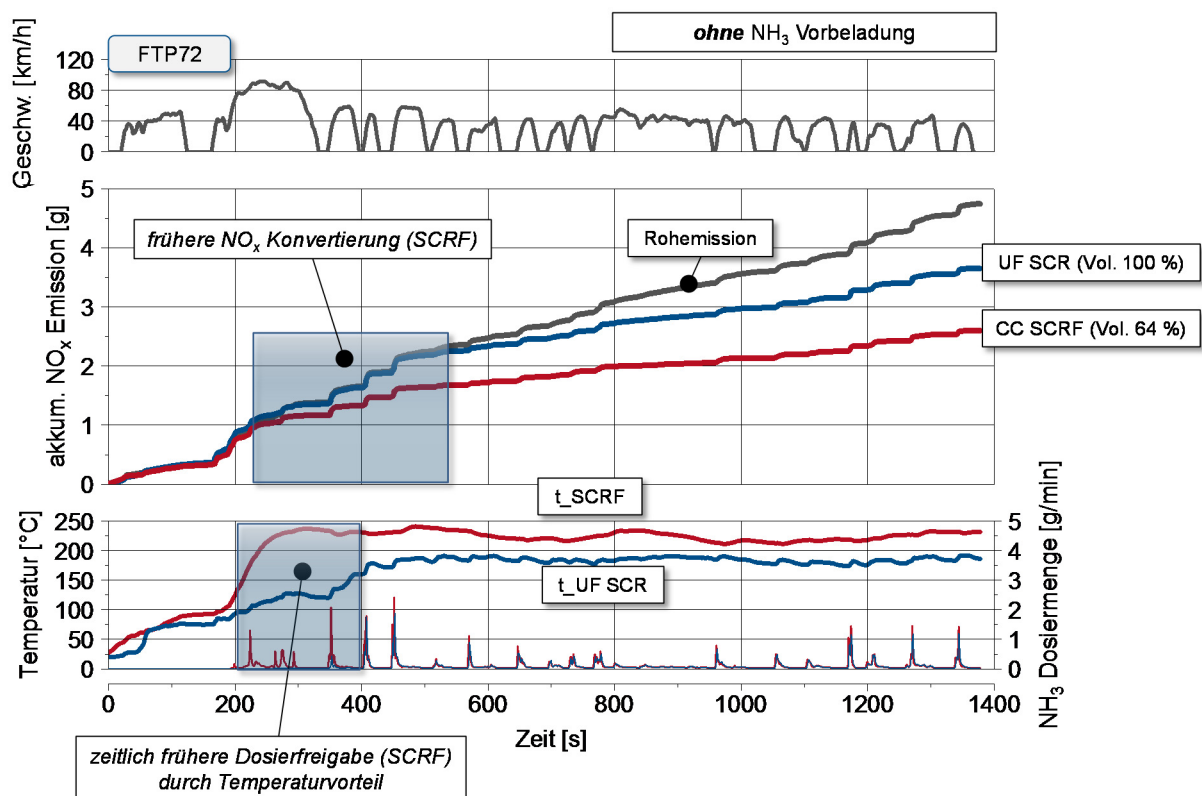


Abbildung 5-75: DeNO_x Performance im transienten Betrieb ohne NH₃ Vorbeladung

mit NH₃ Vorbeladung

Werden die Katalysatoren mit einer NH₃ Vorbeladung konditioniert, die ihrer maximalen NH₃ Speicherfähigkeit bei 300 °C entspricht, dann kehren sich die zuvor gezeigten Ergebnisse um (Abbildung 5-76). Der UF SCR Katalysator erzielt eine bessere NO_x Konvertierung als der motornahe SCRF Katalysator, trotz dessen Temperaturvorteil. Die Ursache hierfür liegt in dem größeren Volumen des UF SCR und der damit verbundenen höheren NH₃ Vorbeladung gegenüber dem CC SCRF. Der Verlauf der akkumulierten NO_x Emissionen belegt, dass die NO_x Konvertierung etwa zum gleichen Zeitpunkt beginnt, wie bei den motonahen Katalysatoren. Die langsame Erwärmung des UF SCR Katalysators bedingt durch seine Einbauposition und die hohe thermische Masse ist in diesem Fall kein Nachteil. Dies ist ein Indiz dafür, dass eine NH₃ Vorbeladung bereits die NO_x Konvertierung aktiviert, auch wenn die Freigabetemperatur für die Reagenzdosierung noch nicht erreicht ist. Wird der CC SCRF Katalysator um einen CC SCR Brick ergänzt, so dass die Kombination aus beiden Katalysatoren dasselbe Volumen hat wie der UF SCR Katalysator, steigt die DeNO_x Performance des SCRF Katalysators in Kombination mit dem SCR Katalysator über die des UF SCR und erzielt eine annähernd vergleichbare DeNO_x Performance wie das motornahe SCR System.

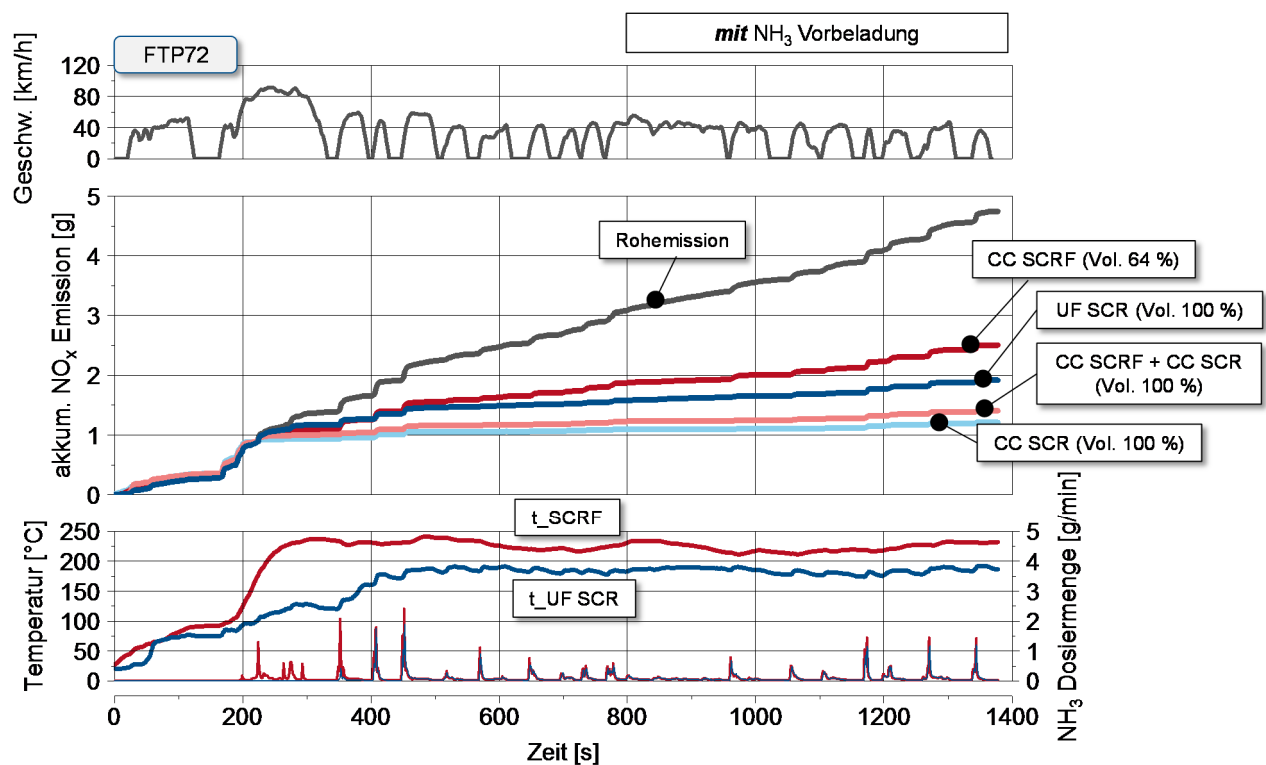


Abbildung 5-76: DeNO_x Performance im transienten Betrieb mit NH₃ Vorbeladung

5.6 Kapitelzusammenfassung

In diesem Kapitel wurde eine Identifikation von Einflussparametern auf ein Abgassystem zur Stickoxidminderung durchgeführt. Thematisch erfolgte hierzu eine Aufteilung: zum einen in die Betrachtung an einem Unterboden SCR System und zum anderen an einem motornahen SCRF System. Basis war in beiden Fällen die gasförmige NH_3 Dosierung. Diese stellt eine Alternative zu der flüssigen AdBlue® Dosierung dar. Als Abgrenzung zu anderen Arbeiten erfolgte in der hier vorliegenden Dissertation die gasförmige NH_3 Dosierung auf Basis von Strontiumchlorid als Trägerstoff. Ziel ist die wissenschaftliche Untersuchung der Systemeigenschaften in Bezug auf den Nutzwert für den Einsatz als Bestandteil der Abgasnachbehandlung. Im Vordergrund der Untersuchung stand die Analyse des Systemverhaltens für unterschiedliche Betriebsszenarien. Denn anders als bei Dosiersystemen auf Basis von flüssigen Reagenzmedien, bei denen die Betriebsbereitschaft unabhängig vom Füllstand des Reagenztanks ist - sofern dieser nicht komplett leer ist - ist dies bei gasförmigen NH_3 Dosiersystemen gänzlich anders. Hier ändert sich das Systemverhalten in direkter Abhängigkeit zum Füllstand der Reagenzbevorratung. Daher wurde für das untersuchte System eine Systemidentifikation in Bezug auf das Entleeren und Befüllen durchgeführt und analysiert, welche Auswirkungen dies auf die Systembereitschaft hat. Zur Vervollständigung wurde das Dynamikverhalten untersucht und eine Energiebetrachtung für den Systembetrieb bei stationärer und transienter Reagenzentnahme angestellt. Als Fazit konnte der Nachweis erbracht werden, dass in allen untersuchten Betriebsszenarien bei einem Motorkaltstart die Aufheizzeit des NH_3 Dosiersystems geringer ist als die Zeit, die verstreicht bis der SCR Katalysator seine Light-Off Temperatur erreicht hat.

In der Fließstrecke des Reagenzmittels kommt nach dem Dosiersystem als Schnittstelle zum Abgasstrang der Injektor. Da sich die Anforderungen für Injektoren/Düsen in Abhängigkeit des Phasenzustands des Reagenzmittels sehr stark voneinander unterscheiden, wurden speziell auf die gasförmige NH_3 Dosierung abgestimmte Düsen in unterschiedlichen Geometrien mit individuellem Strahlbild konstruiert und analysiert. Ziel der Untersuchung war die Bewertung des Einflusses unterschiedlicher Varianten der Reagenzzuführung in den Abgasmassenstrom, so z.B. von der Mitte nach außen oder umgekehrt, von außen nach innen gerichtet. Diese Messungen sind am Motor- und am Strömungsprüfstand durchgeführt worden. Darüber hinaus erfolgte eine Untersuchung, wie sich eine Variation der Mischstreckenlänge und eine Änderung der Düsenposition auf die sich einstellende Gleichverteilung auswirkt. Für die Durchführung dieser Basisvermessungen wurde ein weiteres gasförmiges NH_3 Dosiersystem genutzt. Hierbei handelt es sich um eine Eigenentwicklung, die als Bestandteil der vorliegenden Arbeit aufgebaut und in Betrieb genommen wurde. Bei diesem *VKM-Dosiersystem* (Dosiersystem #1) handelt es sich um ein standortfestes System, welches mittels einer NH_3 Gasflasche gespeist wird. Für den Einsatz im stationären und transienten Betrieb wurde hierfür eine eigenständige Systemsteuerung entwickelt.

Zur Anwendung bei allen eingesetzten Dosiersystemen, sowohl flüssig als auch gasförmig, ist eine universelle Dosierstrategie aufgebaut worden. Diese erlaubt einerseits die einfachste Form der Dosierung, die gesteuerte α Dosierung, aber auch eine selbst adaptierende Mengenregelung bei transientem Motorbetrieb. Aufgrund der hohen Variantenvielfalt an Systemkonfigurationen, wie z.B. unterschiedliche Reagenzmedien und somit Dosiersysteme, unterschiedliche Katalysatoren, Injektoren/Düsen, Mischgeometrien, Verbrennungsmotoren (Diesel/Otto) usw. war das Ziel in der Applikation eine Beherrschbarkeit mit nur wenigen Stellschrauben zu gewährleisten. Hierzu zählt beispielsweise die Kenntnis über das NH_3 Speicherverhalten und das NO_x Konvertierverhalten des

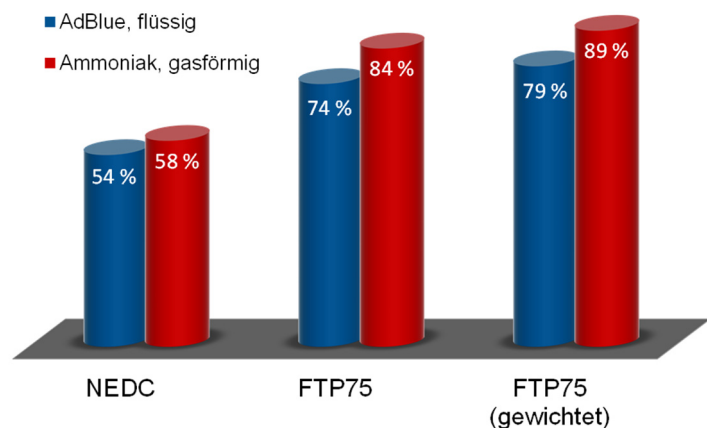


Abbildung 5-77: DeNO_x Performance in transienten Testzyklen

verwendeten SCR Katalysators, das NO_2/NO_x Verhältnis des CRT Systems, den Abgasmassenstrom und das Abgastemperaturniveau des Versuchsmotors. Mit diesen Informationen lässt sich die entwickelte Dosierstrategie auf eine optimierte DeNO_x Performance bei gleichzeitiger NH_3 Schlupfminimierung abstimmen. Aspekte für Langzeitanwendungen, wie sie in einer Serienapplikation im Fahrzeug notwendig sind, z.B. zur Berücksichtigung von sich einstellenden Alterungseffekten wurden in der Prüfstandumgebung nicht aufgegriffen, da sie von untergeordneter Relevanz sind.

Die entwickelten Komponenten und die Methode kommen letztlich für den direkten Vergleich zwischen einer flüssigen AdBlue® und der gasförmigen NH_3 Dosierung zur Anwendung. Folgendes Fazit lässt sich hierbei aus den durchgeführten Messungen ziehen: Bei einem Kaltstart mit leeren SCR Katalysator ist mit einem gasförmigen NH_3 Dosiersystem eine bessere DeNO_x Performance zu erzielen als mit einem flüssigen Dosiersystem (Abbildung 5-77). Der Grund liegt in der Möglichkeit der Dosierfreigabe bei geringeren Abgastemperaturen (120°C), um so auch das Konvertierungspotential des SCR Katalysators bei niedrigen Abgastemperaturen zu nutzen – auch wenn dieses nur gering ist. Bei einem mit NH_3 vorbeladenen SCR Katalysator ist der Unterschied in der sich einstellenden DeNO_x Performance nach einem Kaltstart geringer. Bedingt durch die Überlagerung der zwei NO_x Konvertierungseffekte, zum einen aus dem eingespeicherten und zum anderen aus dem dosierten NH_3 , fällt die frühere Dosierfreigabe weniger ins Gewicht.

Als Alternative zum Unterboden SCR System bietet sich ein motornahes SCRF System an. Das in dieser Arbeit untersuchte Konzept basierte auf einem Dieselpartikelfilter mit einer zusätzlichen SCR Beschichtung, dem sogenannten SCRF Katalysator. Hierdurch kann die DeNO_x Performance des SCR Systems dahingehend verbessert werden, dass zum einen die Light-Off-Temperatur schneller erreicht wird und zum anderen das generelle Temperaturniveau der Katalysatoren zur Verbesserung der NO_x Reduzierung angehoben wird. Bedingt durch eine sehr kurze Mischstrecke gegenüber einem Unterboden SCR Systemen wird ein auf SCRF Anwendungen abgestimmtes NH_3 Dosiermodul entwickelt. Aus den geometrischen Randbedingungen, der in dieser Arbeit untersuchten Abgasanlage, steht eine Mischstrecke von 75 mm zur Verfügung. Bei einer AdBlue® Dosierung bedeutet dies, dass innerhalb dieser Strecke die Verdampfung des flüssigen Reagenz, die Hydrolyse- und Thermolysereaktionen zur NH_3 Bildung und abschließend eine homogene Vermischung mit dem Abgas erfolgen muss. All das ist nur durch die Verwendung von Turbulenzelementen möglich, die die Abgasströmung sehr stark beeinflussen und somit den Abgasgegendruck signifikant erhöhen. Eine Alternative hierzu ist die gasförmige NH_3 Dosierung. Durch die Entwicklung eines NH_3 Dosiermoduls soll die Möglichkeit geschaffen werden, bei einem geringen Abgasgegendruck einen hohen Homogenisierungsgrad zwischen Abgas und Reagenz zu erzielen. Hierzu wurden mehrere geometrische Formen von Düsen-Misch-Elemente als CAD Modellen entworfen und basierend auf den Ergebnissen der durchgeführten CFD Simulationen bewertet. In iterativen Optimierungsschleifen wird eine Geometrieform bis hin zur Prototypenreife weiterentwickelt und als Bauteil für die Verwendung am Strömungs- und Motorprüfstand gefertigt. Anschließend wurde sie in Messungen mit einem AdBlue® Dosiermodul verglichen. Die erreichten Homogenisierungsgrade sind für beide Module ähnlich, ebenso die sich ergebende DeNO_x Performance. Ein Nachteil des NH_3 Dosiermoduls, der sich in den Messungen nachweisen lässt, ist die Druckabhängigkeit resultierend aus Abgasmassenstrom und Reagenzmassenstrom. Stellt sich ein negatives Druckgefälle ein, so dringt Abgas in das Dosiermodul und beeinflusst nachteilig die Dosierung. Hier zeigt sich weiteres Optimierungspotential, zum einen eine weitere Optimierung der Injektorbohrungen in Bezug auf deren Anzahl, Position und Durchmesser, um auf diese Weise den Innendruck des NH_3 im Injektor anzuheben. Zum anderen kann durch die angepasste Applikation der Dosierstrategie darauf Einfluss genommen werden. Eine geringe Dosierfrequenz mit großen Dosiermengen erscheint vorteilhafter als eine hohe Dosierfrequenz mit geringen Dosiermengen. Auf diese Weise kann ebenfalls der Innendruck des Injektors in den Dosierphasen angehoben werden. Letztlich ein großer Vorteil des entwickelten NH_3 Dosiermoduls ist aber der sich einstellende Abgasgegendruck. Dieser ist um den Faktor 4 geringer als der Abgasgegendruck für das AdBlue® Dosiermodul. Die auf diese Weise reduzierte pneumatische Leistung, die vom Motor aufgebracht werden muss, liefert einen zusätzlichen Beitrag zur Kraftstoffeinsparung.

In einer ergänzenden Parameterstudie wurden ausgewählte Einflussfaktoren auf die DeNO_x Performance von SCRF Katalysatoren in Stichversuchen analysiert. Diese Einflussfaktoren beziehen sich auf

die physikalischen Eigenschaften unterteilt nach Katalysatorvolumen, die Washcoatbeladung und das Substrat. Die Messungen werden für stationäre Motorbetriebspunkte und transiente Fahrzyklen durchgeführt. Hierbei konnte das Katalysatorvolumen als der Parameter identifiziert werden, der den größten Einfluss auf die DeNO_x Performance hat. Die mit dem Volumen steigende NH₃ Speicherkapazität wirkt sich vor allem im kaltgestarteten Fahrzyklus mit entsprechender NH₃ Vorbeladung positiv aus. So kann mit einer Kombination aus SCRF und SCR Katalysator im FTP72 Fahrzyklus eine annähernd gleiche DeNO_x Performance, wie mit einem volumenäquivalenten motornahen SCR Katalysator erzielt werden. Ebenso kann die Washcoatbeladung des SCRF Katalysators etwas geringer gewählt werden, als die des SCR Katalysators, ohne einen signifikanten nachteiligen Einfluss. Vielmehr hat der SCRF Katalysator, bedingt durch sein Wall-Flow Substrat, einen positiven Effekt auf die NH₃ Gleichverteilung vor dem SCR Katalysator, was sich besonders in stationären Betriebspunkten zeigt. Hingegen bei einem Motorkaltstart hat die Kombination aus SCR und nachgeschaltetem SCRF Katalysator Vorteile in der DeNO_x Performance. Dies bewirkt die geringere thermische Masse des kleineren SCR Katalysators in Verbindung mit der höheren spezifischen NH₃ Speicherkapazität gegenüber dem SCRF Katalysator.

6 NO_x Emissionsminderung mittels SCR am Mager-Ottomotor

Die Methode der NO_x Emissionsminderung mittels SCR Technologie ist keine Ausschließlichkeitstechnologie für den Dieselmotor. Generell bietet sie sich für die Nachbehandlung der Abgase aller überstöchiometrischen Verbrennungskonzepte an - somit auch für den magerbetriebenen Ottomotor. Aus diesem Grund wird die zuvor am Dieselmotor entwickelte Methodik zur Stickoxidreduktion mittels gasförmiger NH₃ Dosierung auf den Mager-Ottomotor übertragen.

Bei modernen Ottomotoren werden zur Effizienzsteigerung unterschiedliche Ansätze verfolgt. So zum Beispiel das Downsizing-Konzept mit Turboaufladung und Direkteinspritzung oder der Magerbetrieb ($\lambda > 1$) mit Ladungsschichtung. Bei letztgenanntem erreicht der Ottomotor mit Direkteinspritzung einen höheren Wirkungsgrad und somit einen geringeren Kraftstoffverbrauch als ein konventioneller Ottomotor im stöchiometrischen ($\lambda = 1$) Betrieb. Folgende Effekte führen zu einer Erhöhung des Wirkungsgrades [62, 104, 105]

- Geringere Ladungswechselarbeit durch Entdrosselung
- Geringere Wandwärmeverluste durch niedrigere Temperaturen im Brennraum
- Erhöhung des thermischen Wirkungsgrades durch einen höheren Isentropenexponent κ aufgrund der geänderten Gemischzusammensetzung (Luftüberschuß)

Thermischer Wirkungsgrad
$$\eta_{th} = 1 - \frac{1}{\varepsilon^{\kappa-1}} \quad (6-1)$$

- Erhöhung der möglichen Verdichtung ε , da aufgrund der höheren Verdampfungsenthalpie bei Direkteinspritzung der Zylinderinnenkühlungseffekt größer ist und die Klopfneigung vermindert wird

Nachteilig wirkt sich dieser Betriebsmodus jedoch auf die Bildung der Stickoxide und somit auf das Emissionsverhalten in dem dafür typischen Kennfeldbereich - der Teillast - aus. Daher sind Maßnahmen zur Minderung der NO_x Emission erforderlich. Im Folgenden soll untersucht werden, in wie weit sich die Erkenntnisse zur Anwendung eines SCR Systems am Dieselmotor auf den magerbetriebenen Ottomotor übertragen lassen.

6.1 Rekalibrierung: von stöchiometrisch zu mager

Für die Durchführung der Untersuchungen wird auf einen MPFI-Ottomotor zurückgegriffen. Dieser bietet die Möglichkeit der variablen Ventilabschaltung eines der beiden Einlassventile je Zylinder und erlaubt damit die Rekalibrierung vom stöchiometrischen Betrieb auf den Magerbetrieb für den Teillastbereich. Der Aufbau und die technischen Daten zu dem Prüfling sind in Kapitel 4.1 aufgeführt. Der Zugriff auf die ECU wird mit einer generischen seriellen Schnittstelle (DCI-GSI) von dSpace realisiert. Hierbei basiert das Funktionsbypassing und der Datenaustausch auf einer XCP-on-Ethernet Schnittstelle.

Als Stellgrößen für die Rekalibrierung werden der Lambdawert, der Zündwinkel und der Spritzbeginn definiert. Da der Einfluss der Spritzbeginnvariation bei Saugrohreinspritzung im Vergleich zu einer Direkteinspritzung wesentlich geringer ist, wird darauf im weiteren Vorgehen verzichtet. Das Ziel der Rekalibrierung ist eine möglichst hohe Kraftstoffverbrauchsminde rung bei gleichbleibender Stabilität der Verbrennung und Beibehaltung der Laufruhe. Gleichzeitig soll sich nur ein möglichst geringer Anstieg der NO_x Emissionen einstellen. Für eine größtmögliche Kraftstoffersparnis ergibt sich für den Versuchsmotor ein Lambdawert von ca. $\lambda = 1,3$. Die prinzipiellen Aus-



wirkungen, die eine Variation des Lambdawertes auf Emission und Kraftstoffverbrauch bei einem Ottomotor haben, sind in Abbildung 6-2 dargestellt. Der Grad der Abmagerung wird durch die Betriebsgrenzen einer stabilen Verbrennung bestimmt. Bei zu hoch gewählten Luftverhältnissen kommt es zu Zündaussetzern und in deren Folge zu einer erhöhten Kohlenwasserstoffemission und dem Wiederanstieg des Kraftstoffverbrauchs. Der optimale Betriebspunkt liegt daher in dem Intervall einer geringen NO_x Emission und der noch geringen HC Emission (grün gekennzeichnete Bereich).

Mit der Variation des Zündwinkels bei konstantem Lambda erfolgt eine Erhöhung der NO_x Emission bei zunehmender Verstellung in Richtung früh. Dies führt zu einem gesteigerten Verbrennungsdruck mit steilerem Druckgradienten, was wiederum den Anstieg im Motordrehmoment bei gleichbleibender Kraftstoffmengen-zufuhr bewirkt. Gleichzeitig steigt die Spitzentemperatur der Verbrennung durch die damit verbundene Verlagerung des Verbrennungsschwerpunktes, ebenfalls in Richtung früh, an. Die frühe Umsetzung der bei der Verbrennung freigesetzten Wärmeenergie hat bei entsprechender Frühzündung eine Temperaturminderung im Abgas zur Folge. Die in Abbildung 6-1 dargestellten Diagramme zeigen die Verläufe für einen beispielhaften Betriebspunkt mit stationärer Motordrehzahl. Bei konstantem Lambdawert wird der relative Zündwinkel in Richtung früh verstellt. Die auftretende geringfügige Instabilität im Lambdaverlauf ist auf die Deaktivierung der Closed-Loop-Lambda-Regelung zurückzuführen. Diese Maßnahme ist erforderlich, um direkten Schreibzugriff auf den Lambdawert der verwendeten ECU zu erhalten. Für die Rekalibrierung des Kennfeldes wird mittels Indizierung sichergestellt, dass es nicht zum Klopfen während der Verbrennung kommt. Auf Grundlage dieser Zusammenhänge erfolgt die durchgeführte Rekalibrierung des Motors in mehreren Applikationsschritten:

- Lambdavarisation bei stationärer Motordrehzahl und Zündwinkel: Bestimmung des b_e optimalen Lambdawertes unter Beibehaltung der Drehmomentenneutralität (vgl. Abbildung 6-18)
- Zündwinkelvariation bei stationärer Motordrehzahl und Lambda: Steigerung des abgegebenen Motordrehmomentes innerhalb der Klopfgrenze → Ziel: zusätzliche Kraftstoffeinsparung durch Downspeeding-Effekt
- Anpassung des stationär abgestimmten Zündwinkelkennfeldes für den transienten Motorbetrieb → Detektion von Klopfereignissen mittels Körperschallsensor und Indizierung; anschließend Neudefinierung des Zündwinkels nach erfolgter Identifikation des betroffenen Motorbetriebspunktes

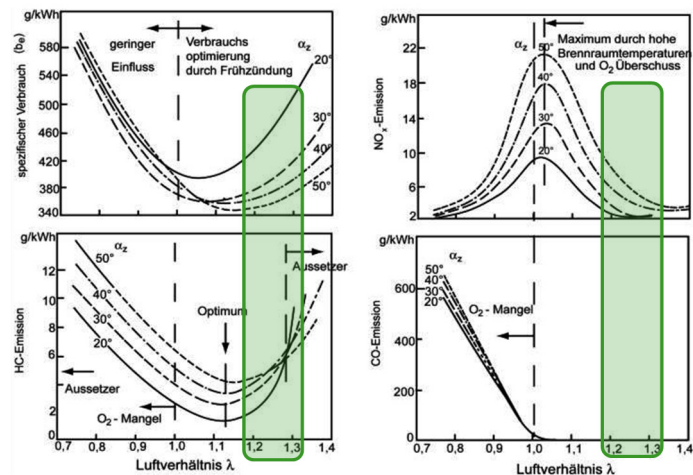


Abbildung 6-2: Auswirkung der Variation des Lambdawertes auf Emission und Kraftstoffverbrauch [10]

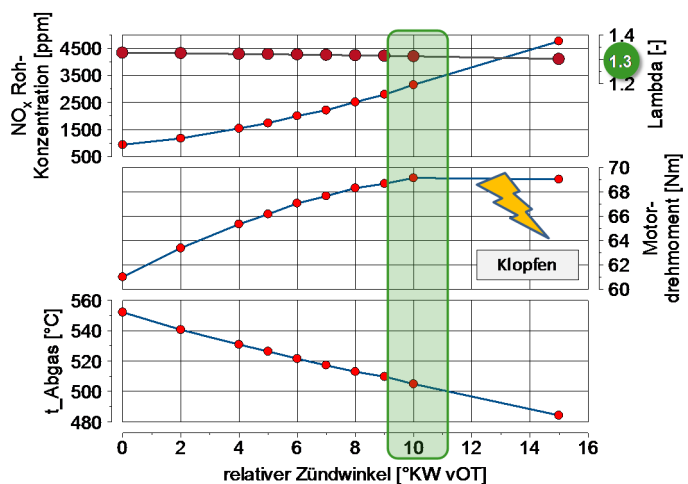


Abbildung 6-1: Auswirkung der Variation des Zündwinkels auf die NO_x Emission, das Motordrehmoment und die Abgastemperatur

6.1.1 Vergleich zwischen stöchiometrischem Betrieb und Magerbetrieb

Das durch die Rekalibrierung erzielte Kraftstoffeinsparpotential ist in Abbildung 6-3 für den stationären und den transienten Motorbetrieb dargestellt. Hierbei ist das Einsparpotential auf den Teillastbereich beschränkt und nimmt innerhalb des Kennfelds in Richtung der Betriebspunkte mit geringen Lasten und Drehzahlen zu (Abbildung 6-3). Im stationären Motorbetrieb können in den Betriebspunkten der Niederlast Einsparungen von über 15 % herausgefahren werden. Ein Großteil der Motorbetriebspunkte, die im NEDC Zyklus angefahren werden, liegen in ebendiesem Bereich der potentiellen Kraftstoffeinsparung.

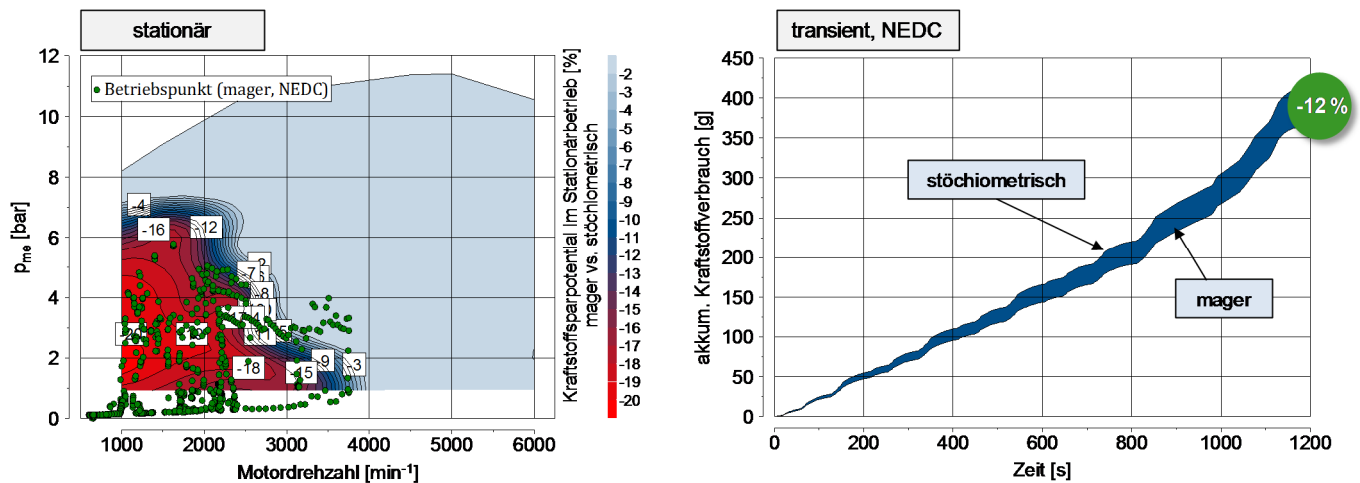


Abbildung 6-3: Vergleichende Darstellung der Kraftstoffeinsparung im stationären und transienten Motorbetrieb

In der Gegenüberstellung des Kraftstoffverbrauchs im NEDC Zyklus ergibt sich eine Kraftstoffeinsparung von 12 % für den Magerbetrieb im Vergleich zum stöchiometrischen Betrieb bei gegebener Drehmomentneutralität. Die NO_x Rohemissionen liegen bei beiden Betriebsstrategien im Zyklus über den Euro 5 Grenzwerten. Im stöchiometrischen Betrieb vermag es der TWC die NO_x Emissionen derart zu reduzieren, dass die entsprechende Abgasnorm eingehalten werden kann. Im Magerbetrieb verhindert der Sauerstoffüberschuß im Abgas eine entsprechende Reduktion. Hingegen werden die Oxidationsreaktionen der Kohlenwasserstoffe und Kohlenmonoxide begünstigt.

Die Steigerung des thermodynamischen Wirkungsgrades des Verbrennungsprozesses führt zu geringeren Energieverlusten durch Abwärme an das Abgas und letztlich zu einem kälteren Abgas. Somit ist im kraftstoffsparenden Magerbetrieb die Aufheizzeit bis zum Erreichen der Light-Off-Temperatur des TWC und des SCR länger als im stöchiometrischen Motorbetrieb. Entsprechend ist das generelle Temperaturniveau im Teillastbetrieb geringer. Dies hat für ein Fahrprofil, das charakterisiert ist durch eine geringe Fahrdynamik und ein geringes Lastprofil, wie bspw. den NEDC dahingehend Auswirkung, dass die Betriebstemperatur der Katalysatoren reduziert ist (Abbildung 6-4). An dem bestehenden Motorprüfstand kann eine Temperaturabsenkung direkt vor dem im Unterbodenbereich verbauten SCR Katalysator (vgl. Abbildung 6-6) um etwa 20 °C im ECE Teil des NEDC gemessen werden.

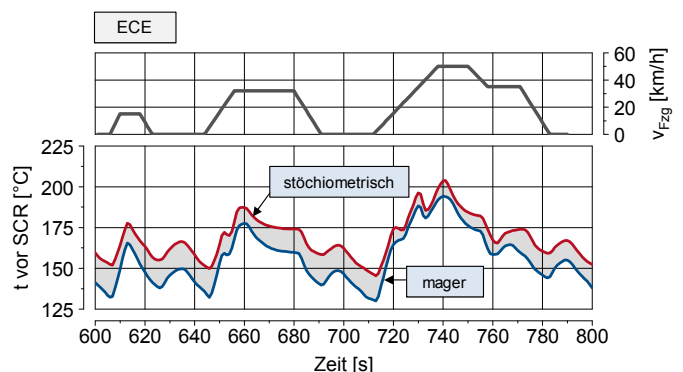


Abbildung 6-4: Temperaturverlauf für den stöchiometrischen - und den Magerbetrieb

6.1.2 Vergleich der NO_x Rohemissionen: Dieselmotor vs. Mager-Ottomotor

Der Betriebsbereich beider Verbrennungskonzepte unterscheidet sich voneinander. Wird der Dieselmotor über sein gesamtes Kennfeld überstöchiometrisch betrieben so ist dies beim Mager-Ottomotor nur in der Teillast der Fall. Das Abgas im Magerbetrieb des Ottomotors ist in seiner Zusammensetzung ähnlich dem des Dieselmotors. In den NO_x Rohemissionen bezogen auf die spezifische Leistung liegen der Dieselmotor und der Ottomotor, solange dieser überstöchiometrisch betrieben wird, auf vergleichbarem Niveau (Abbildung 6-5). Der entscheidende Unterschied liegt letztlich in dem globalen Lambda resultierend aus dem verbleibenden Sauerstoff nach der Verbrennung.

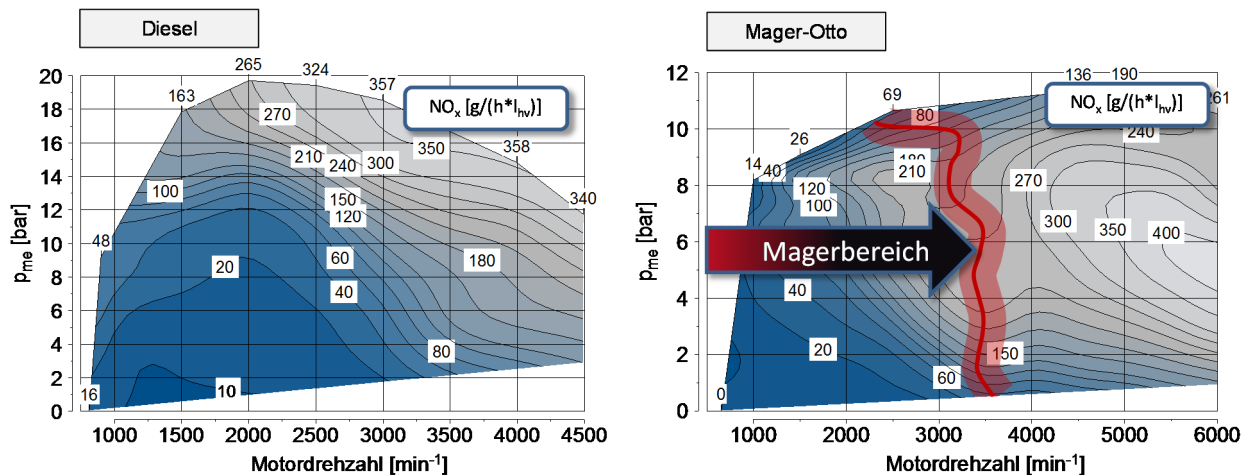


Abbildung 6-5: Vergleichende Darstellung der spezifischen NO_x Rohemissionen [118]

In Bezug auf das NO₂/NO_x Verhältnis unterscheiden sich jedoch die beiden Motorkonzepte, wobei der Ottomotor die geringeren NO₂ Emissionen hat (vgl. Abbildung 2-4). Dies liegt vor allem an der höheren Verbrennungstemperatur und an dem geringeren Sauerstoffangebot während der Verbrennung.

6.2 Aktives SCR System

Layout der Abgasanlage

Der Prüfstandsaufbau für die SCR Untersuchungen ist in Abbildung 6-6 schematisch dargestellt. Auf Basis der Serienkonfiguration sind entsprechend der Positionierung im Fahrzeug ein motornaher TWC, sowie ein Unterboden TWC am Motorprüfstand verbaut. Diese werden durch einen SCR Katalysator im Unterbodenbereich ergänzt. In Ermangelung eines CRT Systems müssen die verbauten Drei-Wege-Katalysatoren zusätzlich zur Erhöhung des NO₂ Anteils vor dem SCR Katalysator mittels Oxidation von NO zu NO₂ beitragen. Zur Identifikation des Systemverhaltens werden Variationen in der Beschichtung der verwendeten TWC vorgenommen. Diese unterscheiden sich primär in der Zusammensetzung und der Massen der verwendeten Edelmetalle. Der motornaher TWC hat stets eine reine Pd Beschichtung und ein Volumen von 0,71 l. Die Beschichtung des Unterboden TWC ist eine Mischung aus Pt/Pd/Rh und das Volumen beträgt hier 0,54 l.

Die untersuchten SCR Katalysatoren unterscheiden sich in Bezug auf ihre Beschichtung basierend auf Cu- und Fe-Zeolithe. Das Volumen beträgt stets 2 l. Die Reagenzdosierung erfolgt mittels dem VKM Dosiersystem mit gasförmigem NH₃. Als Injektor dient die Stabdüse (vgl. Kapitel 5.2.1) mit nachgeschaltetem Mischelement.

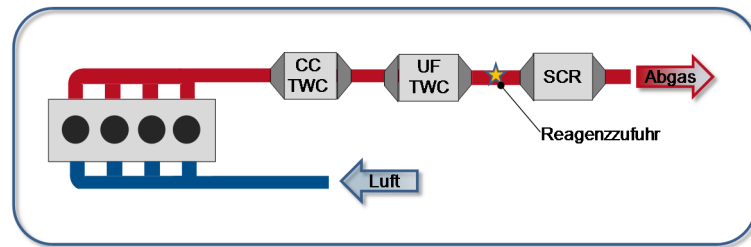


Abbildung 6-6: Layout eines Abgasnachbehandlungssystems für Mager-Ottomotoren

Potential der NO_x Emissionsminderung

Die Abstimmung der einzelnen Katalysatoren aufeinander ist ein entscheidender Faktor, um hohe NO_x Konvertierungsraten zu ermöglichen. Die vom Motor emittierten Stickoxide sind in nahezu allen Betriebspunkten zum größten Teil nur Stickstoffmonoxide NO . Dies macht den Einsatz eines Katalysators mit oxidierenden Eigenschaften vor dem SCR Katalysator unumgänglich. Insbesondere ist der Fe-Zeolith auf ein ausgeglichenes Verhältnis von NO/NO_2 als optimale Vorkonditionierung für die SCR Reaktion angewiesen. Da der Ottomotor aber ein geringeres NO_2/NO_x Verhältnis in den Rohemissionen hat als der Dieselmotor - auch im Magerbetrieb - muss durch die verbauten TWC der NO_2 Anteil erhöht werden.

NO_2/NO_x Ratio

Für die Untersuchung werden drei unterschiedliche Katalysatorkombinationen, bestehend aus einem motornahen (CC) TWC und einem Unterboden (UF) TWC, in Bezug auf ihre Eigenschaften zur NO_2 Bildung untersucht. Bei Kombination A und B ist stets der UF TWC identisch und der CC TWC wird getauscht. In der Kombination B und C ist hingegen der CC TWC identisch und der UF TWC wird getauscht (Abbildung 6-7).

Die qualitativen Verläufe der gemessenen Ergebnisse zeigen, dass der CC TWC mit der reinen Pd Beschichtung keinen nennenswerten Einfluss auf die Bildung von NO_2 hat. Die gegebene Selektivität favorisiert die Oxidation von HC und CO. Im Gegensatz hierzu führt die Pt/Pd/Rh Beschichtung des UF TWC zu einer selektiven Oxidation von NO zu NO_2 . Die Ausprägung der NO_2 Formierung ist bestimmt durch den Anteil der Pt Beschichtung. Der charakteristische Verlauf für die NO_2 Ausbeute aller drei TWC Kombinationen weist einen NO_2 Peak bei einer am UF TWC Ausgang gemessenen Temperatur von 400°C auf. Hier erreichen alle Varianten einen Maximalwert von ca. 0,25. Somit wird gerade einmal der halbe Wert von den angestrebten 0,5 für die Standard SCR Reaktion erreicht. Zum Vergleich dazu werden bei einem CRT System für den Dieselmotor Maximalwerte zwischen 0,65-0,7 erreicht (vgl. Abbildung 2-12). Mit weiter steigender Temperatur kommt es zu einer synchronen Abnahme der NO_2 Formierung. Dies ist zum einen mit der thermischen Deaktivierung der katalytischen Zonen in dem TWC und zum anderen mit der gegen Null sinkenden NO_2 Rohemissionen bei steigender Motorlast zu erklären.

Im transienten Motorbetrieb mit Kombination A reflektiert der NO_2/NO_x Verlauf während eines kalt gestarteten NEDC das Verhalten aus den Voruntersuchungen (Abbildung 6-7). In der ersten Phase von 0-200 s liegt ein sehr geringes NO_2/NO_x Verhältnis vor. Hier überwiegt das vom kalten Motor emittierte Roh- NO_2 . Der Anteil an NO kann vom noch kalten TWC nicht oxidiert werden. Nachdem der Motor und der TWC in der mittleren Zyklusphase von 200-1000 s betriebswarm sind, werden die NO_2 Rohemissionen weniger und der TWC übernimmt anteilig die NO_2 Formierung. Das Temperaturniveau im NEDC ist aber zu gering, als dass das NO_2/NO_x Verhältnis im Mittel über 0,2 ansteigt. In der letzten Phase von 1000-1200 s kommt es zu einem Rückgang der NO_2 Bildung. Der EUDC ist bestimmt von der Superposition einzelner Effekte: Zum einen steigt die TWC Temperatur auf einen Maximalwert von über 500°C und erreicht damit die thermische Oxidationsgrenze des TWC und zum anderen verringert sich die NO_2 Rohemission durch die hohe Motorlast.

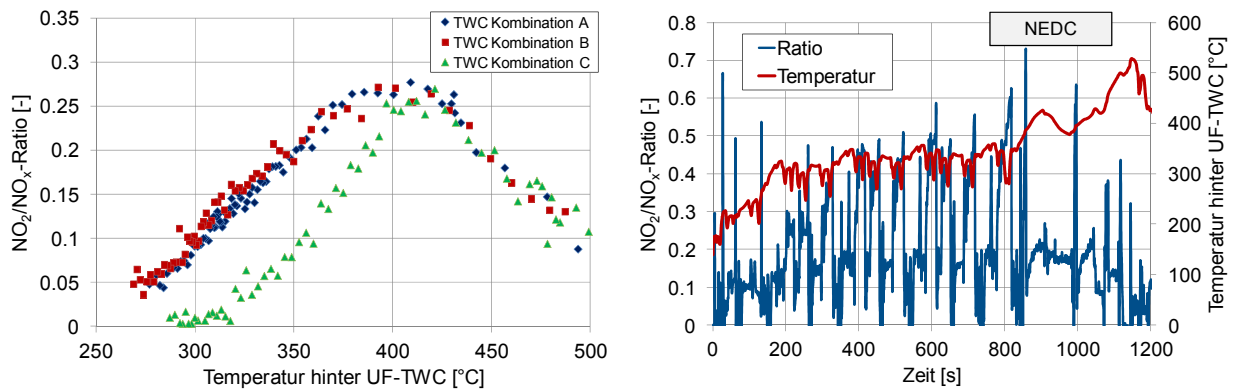


Abbildung 6-7: NO_2/NO_x Ratio nach TWC, stationär (links) und transient (rechts)

NO_x Konvertierung

Zwar liegen die spezifischen NO_x Emissionen von Diesel- und Mager-Ottomotor auf einem vergleichbaren Niveau doch sind die NO_x Konzentrationen stark unterschiedlich. Je nach Betriebspunkt kann hier ein Faktor größer 10 dazwischenliegen. Der Wert der NO_x Konzentrationen für den Dieselmotor ist aufgrund des wesentlich höheren Luft-Kraftstoffverhältnisses der niedrigere. Dies spiegelt sich in den Anforderungen an das SCR System wieder. Die relative De NO_x Performance des SCR Katalysators ist neben der Abgastemperatur und dem NO_2/NO_x Verhältnis auch von der vorherrschenden NO_x Konzentration abhängig (Abbildung 6-8).

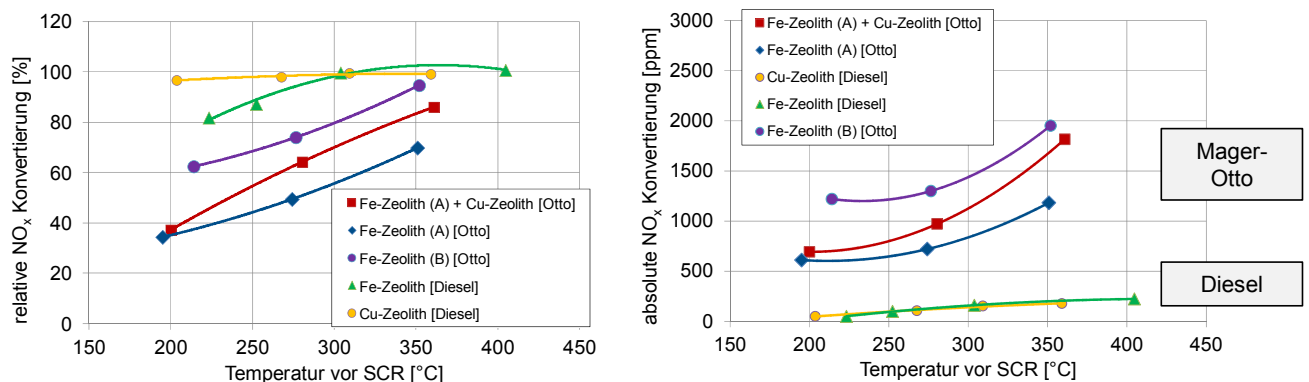


Abbildung 6-8: Vergleich der De NO_x Performance für unterschiedliche SCR Systeme bei Mager-Otto und Diesel

Bei den untersuchten SCR Katalysatoren handelt es sich um thermisch gealterte Substrate mit Cu- und Fe-Zeolithen. In der Analyse der relativen De NO_x Performance zeigen die eingesetzten Katalysatoren am Mager-Ottomotor eine schlechtere Effizienz als die am Dieselmotor verwendeten. Am Dieselmotor bestätigt der Cu-Zeolith seine bessere Niedertemperaturaktivität gegenüber dem Fe-Zeolith. Es können in stationären Betriebspunkten NO_x Konvertierungsraten über 90 % erzielt werden. Am Mager-Ottomotor dagegen liegen die gemessenen Werte wesentlich darunter. Es kann nachgewiesen werden, dass in Abhängigkeit der gewählten Beschichtung noch ein Potential zur Steigerung der De NO_x Performance vorhanden ist (Fe-Zeolith (B)). Eine weitere Maßnahme ist die Vergrößerung des SCR Katalysatorvolumens und somit der Anzahl der katalytisch aktiven Zentren. Jedoch mit Blick auf die tatsächlich umgesetzte NO_x Konzentration wird deutlich, dass die verwendeten SCR Katalysatoren am Mager-Ottomotor absolut gesehen wesentlich mehr Stickoxide umsetzen müssen.

Ein Quervergleich mit der von Hertzberger [62] am DI-Ottomotor entwickelten Betriebsstrategie für ein NSK System bestätigt, dass mit dem Ziel geringerer NO_x Rohemissionen ein wesentlich höheres Lambda anzustreben ist. Hertzberger betreibt hierzu den Motor bei $\lambda=2,1$. Der in der hier vorliegenden Arbeit als Prüfling eingesetzte Motor erlaubt aus den eingangs erläuterten Gründen solch einen Betriebszustand jedoch nicht.

Katalysatorvolumen

In der Betrachtung der Messergebnisse zur absoluten Konvertierung der Stickoxide zeigt sich eine gute DeNO_x Performance der untersuchten SCR Katalysatoren. Damit diese sich auch in der relativen DeNO_x Performance niederschlagen, bedarf es weiterer Maßnahmen. Hier kann durch eine Variation in der Beschichtung noch Verbesserungspotential genutzt werden. Ein weiterer Ansatz bietet die Vergrößerung des Katalysatorvolumens. Da keine weiteren Prüflinge zur Verfügung stehen, kann die folgende These nur theoretisch betrachtet werden. Mit Kenntnis über die Rohkonzentration von NO_x und der über den SCR Katalysator umgesetzten absoluten Menge an NO_x wird nach (6-2) ein Berechnungsansatz aufgestellt.

$$V_{kat_soll} = V_{kat_ist} * \frac{c_{NOx_roh}}{\Delta c_{NOx_SCR}}, \quad \text{mit} \quad \Delta c_{NOx_SCR} = c_{NOx_vor} - c_{NOx_nach} \quad (6-2)$$

Die Grundannahme hierbei: Mit größerem Katalysatorvolumen lässt sich die NO_x Konvertierungsrate steigern. Zur Abschätzung der erforderlichen Dimension wird basierend auf den Ergebnissen mit dem Fe-Zeolith (B) SCR Katalysator eine Berechnung durchgeführt. Hieraus folgt, dass für eine NO_x Konvertierung im Niedertemperaturbereich ein um mindestens 75 % größeres Katalysatorvolumen erforderlich wäre. Das sich ergebende Gesamtvolumen würde theoretisch für diesen Anwendungsfall ca. 8 l betragen (Abbildung 6-9). Aspekte die bei dieser Herangehensweise zur Auslegung unberücksichtigt bleiben sind bspw. der Einfluss einer geänderten Washcoatbeladung, die Auswirkung der höheren Wärmekapazität durch die gesteigerte thermische Masse auf das Aufheizverhalten bei kaltgestarteten Zyklen und welche Vorteile tatsächlich in der NO_x Umsatzrate zu erzielen sind.

Aus dem Blickwinkel des Packaging ist solch eine Dimension für einen Unterboden SCR Katalysator im PKW Segment als kritisch zu bewerten, zumal der Unterboden TWC ebenfalls Bauraum beansprucht.

Zyklusergebnis

Die Summe der dargestellten Einflussparameter findet sich in dem Ergebnis der DeNO_x Performance des transienten Testzyklus wieder. Hierbei stellt der NEDC die größte Herausforderung dar. Denn dieser Zyklus wird aufgrund seines geringen Lastprofils nahezu vollständig im Magerbetrieb durchfahren. Mit der aus den Voruntersuchungen bekannten Katalysatorkombination, mit der besten Effizienz in den stationären Messungen, lässt sich im NEDC eine maximale NO_x Konvertierung von 25 % erzielen (Abbildung 6-10). Für die qualitative Bewertung dieses Wertes gilt es stets die herrschenden Randbedingungen mit zu berücksichtigen. Diese stellen für eine SCR Anwendung, unter anderem durch die hohen NO_x Rohemissionen, das worst-case Szenario dar. Sie liegen um ein Vielfaches über dem Euro 6 Grenzwert. Außerdem ist die Abgastemperatur am SCR Katalysator auf ähnlich geringem Niveau wie bei Dieselanwendungen. Der Grund hierfür ist zum einen die generell geringere Abgastemperatur bei Abmagerung im Vergleich zu stöchiometrischen Motorbetrieb und zum anderen die motorferne Unterboden Position des SCR

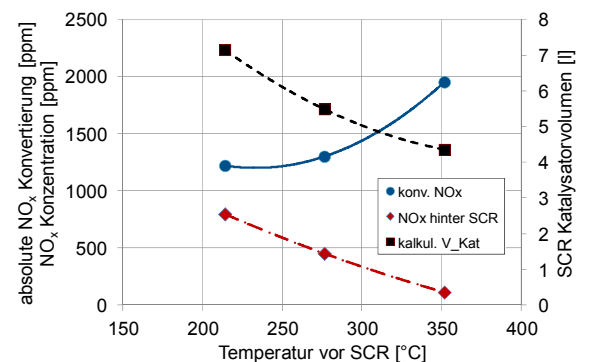


Abbildung 6-9: Berechnungsansatz zur Bestimmung des erforderlichen Katalysatorvolumens

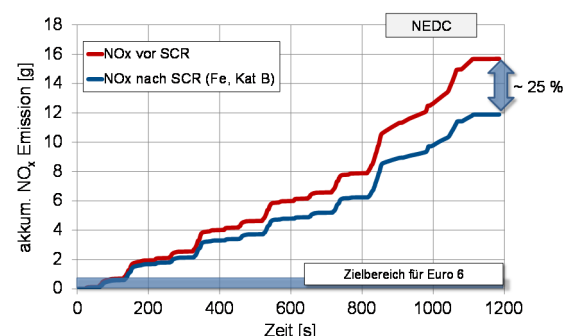


Abbildung 6-10: DeNO_x Performance im NEDC

Katalysators. Somit kann trotz der gasförmigen NH_3 Dosierung und der damit verbundenen frühen Dosierfreigabe keine effiziente DeNO_x Performance erzielt werden.

6.3 Passives SCR System

Rechtslage bei SCR Anwendungen

Gemäß der Richtlinie 2005/78/EG & 2006/51/EG sind Fahrzeuge mit aktivem SCR System mit einem On-Board-Diagnosesystem (OBD) zur Überwachung der Emissionen und der Funktionstüchtigkeit des Abgasnachbehandlungssystems auszustatten. Solch ein Diagnosesystem hat unter anderem die Funktion, den Fahrer über den aktuellen Füllstand des Reagenztanks visuell über eine Anzeige im Armaturenbrett zu informieren. In folgenden Fällen muss zudem eine Warnung an den Fahrer ausgegeben werden:

- Der Füllstand des Reagenzmittels ist unter 10 % oder unter einen vom Hersteller festgelegten höheren Wert abgesunken.
- Die verbleibende Menge an Reagenz reicht nicht für die theoretische Reichweite, die mit der Restkraftstoffmenge möglich ist.
- Reagenzbehälter leer

Des Weiteren werden Systemstörungen diagnostiziert und führen zu einem Eingriff des Motormanagements in den Motorbetrieb. Eine Auswahl an überwachten Ereignissen, die in die Klasse der Fehlfunktionen eingestuft werden ist in nachfolgender Liste aufgeführt:

- OBD Schwellwert der NO_x Emissionen wird überschritten
- Die im Reagenzbehälter befindliche Flüssigkeit erfüllt nicht die in der Richtlinie 2005/78/EG genannten Mindestanforderungen. (→ Qualitätsüberwachung)
- Abweichung von Reagenzverbrauch zu Reagenzbedarf zu groß ($> 50\%$ vom \emptyset , z.B. durch eine Leckage)
- bei einer nicht durch die ECU initialisierten Unterbrechung der Reagenzzufuhr

Wird vom Fahrzeugführer nicht auf die Warnmeldungen bezüglich der Fehlfunktionen des SCR Systems durch angepasstes Handeln reagiert, erfolgt ein Eingriff der ECU. Entsprechend der jeweiligen Fahrzeugkategorie erfolgt beispielsweise im Heavy-Duty Sektor ein Eingriff des Drehmomentbegrenzers. Gestaffelt nach Fahrzeugklasse wird das Drehmoment unabhängig von der Motordrehzahl auf 60 %, bzw. 75 % des Volllastdrehmoments begrenzt [33]. In PKW Anwendungen geht dies noch eine Stufe weiter. Hier wird von der ECU in letzter Konsequenz, nach wiederholtem Ignorieren von Warnhinweisen, der Start des Motors solange unterbunden bis die Funktionsstörung des SCR Systems behoben ist [33].

Motivation

Beschränkt sich der Bewertungsraum eines NO_x Abgasnachbehandlungssystems allein auf die Bereitstellung des Reagenzmittels, die Funktionstüchtigkeit und die wirtschaftlichen Aspekte, dann ergibt sich aus der vorgenannten Rechtslage die Motivation für die Entwicklung eines Passiv SCR Systems.

Das Grundprinzip des Passiv SCR Systems ist die Bereitstellung von NH_3 für die NO_x Reduzierung mit vorhandenen Bordmitteln und stellt eine Exklusivität für den Mager-Ottomotor dar. Es wird komplett auf die Komponenten eines aktiven SCR Systems verzichtet. Somit entfällt ein entsprechendes Bevorratungs- und Heizsystem für das Reagenz, die Pumpeneinheit und das Dosierelement. Lediglich der SCR Katalysator wird benötigt. Im Vergleich zu weiteren DeNO_x Konzepten kann auf einen mit Edelmetall und Seltenen Erden beschichteten NO_x Speicherkatalysator verzichtet werden. Dies mindert die Gefahr einer Schwefelvergiftung bei Verwendung von Kraftstoffen mit hohem Schwefelgehalt. Jedoch ist die Strategie des Motorbetriebs vergleichbar mit der bei einem verbauten NO_x Speicherkatalysator. Hierzu

wird periodisch zwischen dem über- und dem understöchiometrischen Betrieb umgeschaltet. Das in den understöchiometrischen Phasen gebildete NO, CO und H₂ trägt dazu bei, dass mit Hilfe des mit Palladium beschichteten Drei-Wege-Katalysators (TWC) Ammoniak gebildet wird. Dieses über den TWC gebildete NH₃ wird im SCR Katalysator zwischengespeichert. In den Phasen des überstöchiometrischen Motorbetriebs kann die NO_x Reduktion mittels dem eingespeicherten NH₃ erfolgen.

Die für den NH₃ Bildungsprozess relevanten Reaktionen im TWC sind bereits seit den 1970er Jahre bekannt [93, 106] und nachfolgend aufgeführt:



Für das Verständnis des Bildungsprozesses erfolgt eine Systemidentifikation. Ziel ist es, die Zusammenhänge und Abhängigkeiten aufzuzeigen. Die Untersuchungen zu dem Passiv SCR System erfolgen an demselben Motorprüfstand mit denselben Komponenten wie zuvor die Messungen mit dem aktiven SCR System.

6.3.1 Identifikation der stationären NH₃ Bildungsvorgänge mittels TWC

Im ersten Schritt wird für ausgewählte stationäre Betriebspunkte eine Lambda-Variation durchgeführt. Entsprechend dem Lastkollektiv des verwendeten Motors im NEDC wird der $p_{me}=4$ bar Punkt ausgewählt, da dieser Lastpunkt im NEDC Zyklus relativ häufig angefahren wird und somit als repräsentativ einzustufen ist. Der Lastpunkt wird mit unterschiedlichen Motordrehzahlen gefahren und über die Vorgabe eines Soll-Lambdawertes manipuliert. Für die Messungen werden alle weiteren Parameter, wie bspw. der Zündzeitpunkt, nicht manipuliert, sondern mit den Standard-Applikationseinstellungen der ECU gefahren.

Lambda-Variation bei unterschiedlichen Motordrehzahlen

In Abhängigkeit des Lambdawertes kann ein Einfluss auf das gebildete NH₃ stromabwärts hinter TWC nachgewiesen werden. Es ergibt sich ein charakteristischer Verlauf für die sich ausbildende Kurvenschar aller angefahrenen Motordrehzahlen. In Bereichen sehr fetter Gemische mit $\lambda=0,8-0,85$ liegen geringe NH₃ Mengen im Abgas vor. Daher ist bei NSK Betriebsstrategien, bei denen mit $\lambda=0,7$ [62] gefahren wird nicht mit NH₃ Bildungen zu rechnen. Der Grund ist das geringe Vorhandensein von NO bei niedrigen Lambdawerten. Bei Erhöhung des Lambdawertes folgt die NH₃ Bildung mit einem progressiven Gradienten. Mit der verwendeten Konfiguration des TWC wird das Maximum der NH₃ Bildung bei einem Lambdawert von $\lambda=0,94$ erreicht. Dieser Wert deckt sich mit dem an einem DI-Ottomotor gemessenen Ergebnis von Weirich [28]. Eine weitere Erhöhung des Lambdawertes hin zur stöchiometrischen Verbrennung ($\lambda=1$) führt zu einem stark degressiven Gradienten der NH₃ Formierung (Abbildung 6-11).

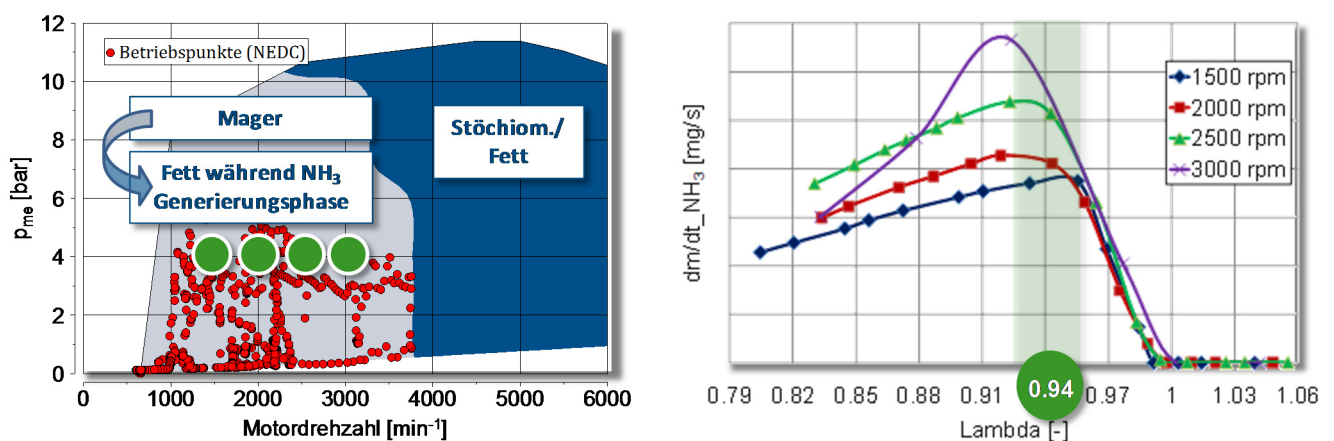


Abbildung 6-11: Lambda-Variation bei unterschiedlichen Motordrehzahlen [118]

Im überstöchiometrischen Bereich ($\lambda > 1$) kommt es zu einer vernachlässigbaren NH_3 Bildung. Dies ist auf das geringe Vorhandensein von CO und H_2 zurückzuführen. Der nun vorhandene Sauerstoff im Abgas fördert die Oxidationsreaktionen im TWC.



Lambda-Variation bei unterschiedlichen Motorlasten

In der zweiten Fallbetrachtung wird die Lambda-Variation bei konstanter Drehzahl und unterschiedlichen Motorlasten durchgeführt. Die Motordrehzahl beträgt hierbei 1500 min^{-1} und der effektive Mitteldruck variiert zwischen 2, 4 und 6 bar (Abbildung 6-12).

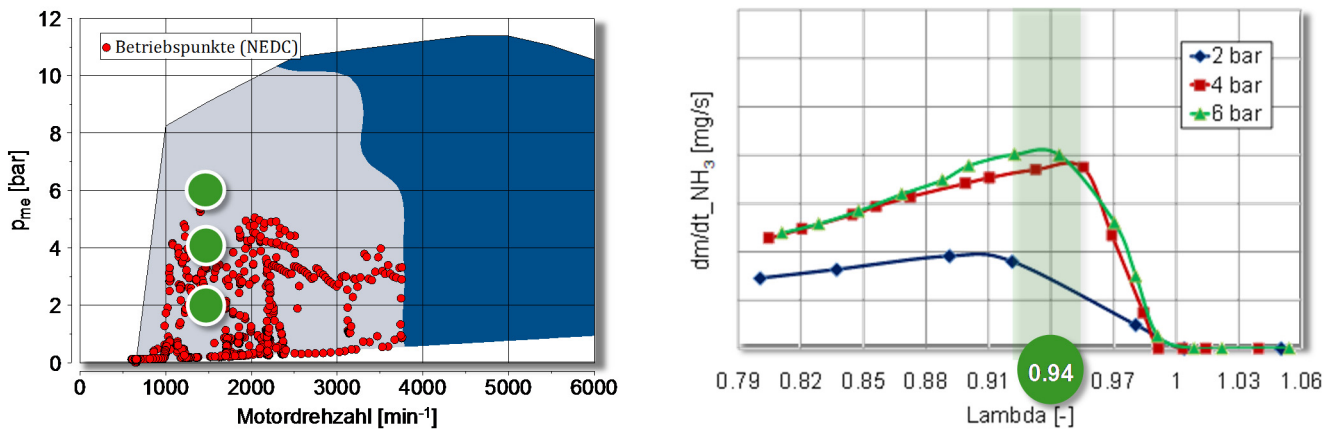


Abbildung 6-12: Lambda-Variation bei unterschiedlichen Motorlasten [118]

Der charakteristische Verlauf der Kurvenschar entspricht dem aus der ersten Fallbetrachtung. Es ist ein Anstieg der NH_3 Bildung mit steigender Motorlast nachweisbar. Dies gilt für den gesamten unterstöchiometrischen Lambdabereich. Es kann außerdem nachgewiesen werden, dass es eine Bildungsgrenze gibt. Eine weitere Steigerung der Motorlast trägt zu keiner gesteigerten NH_3 Bildung bei.

Dieses Verhaltens deutet auf eine Temperaturabhängigkeit des Bildungsprozesses hin. Für die Analyse wird die NH_3 Bildung über die TWC Temperatur erfasst. Hierzu wird eine Light-Off-Messung durchgeführt. Bei stationärem Motorbetrieb mit einer konstanten Drehzahl von 2000 min^{-1} und einem vorgesteuerten Lambdawert von 0,94 wird die Last des Motors stufenweise erhöht und wieder abgesenkt. Die ermittelten Ergebnisse sind in Abbildung 6-13 dargestellt.

Im Diagramm ist das Temperaturkennfeld des TWC aufgetragen. Diesem überlagert sind die ermittelten NH_3 Emissionswerte. Der Durchmesser des Punktes (Abbildung 6-13, oben) ist repräsentativ für den gemessenen NH_3 Wert. Für eine Betriebsstrategie eines Passiv SCR Systems liefern die Ergebnisse eine erste Randbedingung. Die Betriebsartenumschaltung von Mager- auf Fettbetrieb

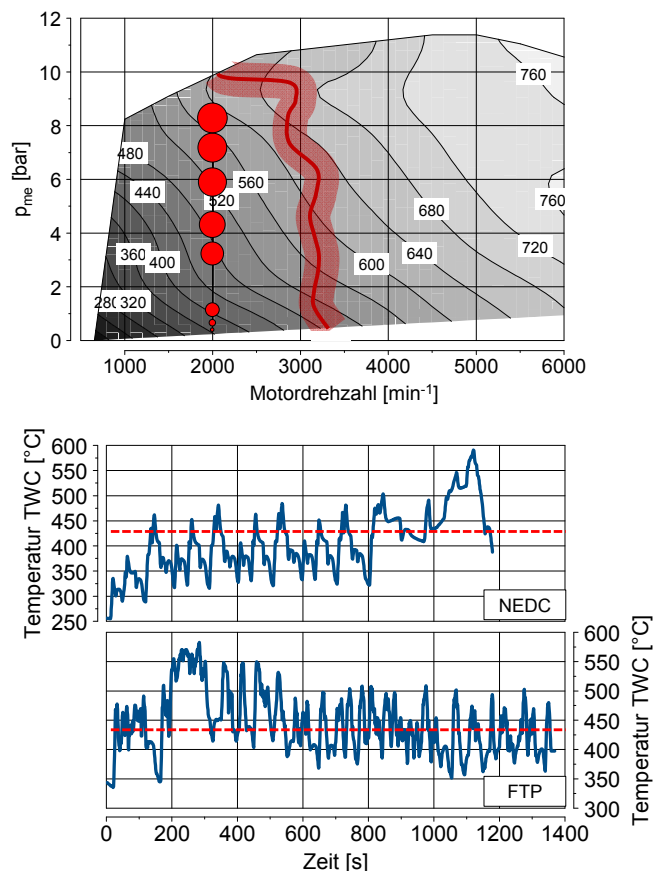


Abbildung 6-13: Temperaturabhängigkeit der NH_3 Bildung (oben), Temperaturverlauf im Zyklus (unten)

sollte aus Effizienzgründen nicht bei TWC Temperaturen unter 420 °C vorgenommen werden. Als obere Grenze ergibt sich vornehmlich der Bereich in dem der Motor stöchiometrisch betrieben wird. Die TWC Temperatur liegt in dem oberen Übergangsbereich bei etwa 600 °C. Somit stellt sich für eine effektive NH₃ Bildung mittels TWC ein schmales Temperaturintervall von $\Delta t = 180$ °C ein. In Abbildung 6-13 (unten) sind die Temperaturverläufe für den TWC in den jeweiligen Zyklen (NEDC, FTP72) dargestellt. Die Zyklen wurden mit einem betriebswarmen Motor aus dem Leerlauf heraus gestartet. Die untere Grenztemperatur für die Umschaltung ist durch die gestrichelte Linie markiert. Für den NEDC ergibt sich für die Betriebsartenumschaltung nur in den Beschleunigungsphasen der ECE Abschnitte und in dem EUDC Abschnitt die geeigneten Bedingungen. Im FTP wird eine hinreichend hohe TWC Temperatur bereits nach 200 s erreicht. Das generell höhere Temperaturniveau im FTP ist für eine Passiv SCR Betriebsstrategie somit besser geeignet.

Variation der Ansaugluftfeuchte

Das Vorhandensein von Luftfeuchtigkeit in der Ansaugluft des Verbrennungsmotors hat Einfluss auf die Bildung von Stickoxiden. Sowohl beim Ottomotor [14] als auch beim Dieselmotor [13] verringert sich die NO_x Bildung im Verbrennungsprozess nachweislich mit steigender Luftfeuchtigkeit. Dies ist letztlich auf eine abgesenkte Verbrennungstemperatur durch die erforderliche Verdampfungsenthalpie des Wassers zurückzuführen [10]. Für den Nachweis, ob der Wassergehalt der Ansaugluft ebenfalls eine messbare Beeinflussung auf die NH₃ Bildung als Folge hat, wird eine Variation der Luftfeuchte durchgeführt. Die Gleichungen (6-7) und (6-8) beschreiben Nebenreaktionen im TWC, die eine NH₃ Bildung aufgrund des Vorhandenseins von Wasser zulassen.



Für die Messungen wird eine Variation der Ansaugluftfeuchte vorgenommen. Hierzu wird mittels einer Luftkonditionieranlage die Raumlufttemperatur und -feuchte innerhalb der Prü fzelle auf definierte Vorgaben konditioniert. Die Vorgabe orientiert sich am Einstellbereich der Konditionieranlage. Für die Temperatur wird bewusst ein erhöhter Wert gegenüber den Konditionierbedingungen im Typzulassungsverfahren gewählt. Für die durchgeführten Untersuchungen beträgt dieser 26 °C. Die Begründung hierfür: Auf diese Weise kann entsprechend dem Mollier-h-x-Diagramm (Abbildung 6-14) ein breiter Bereich für den Wert der absoluten Feuchte abgedeckt werden, ohne dass es zu einer Sättigung und Kondensatbildung in der Ansaugluft kommt. Im rechten Teil der Abbildung 6-14 ist der gemessene Einfluss auf die NO_x Emission in Abhängigkeit der Luftfeuchte dargestellt. Der eingestellte Motorbetriebspunkt ist: $n_{\text{Motor}} = 2500 \text{ min}^{-1}$ und $p_{\text{me}} = 4 \text{ bar}$.

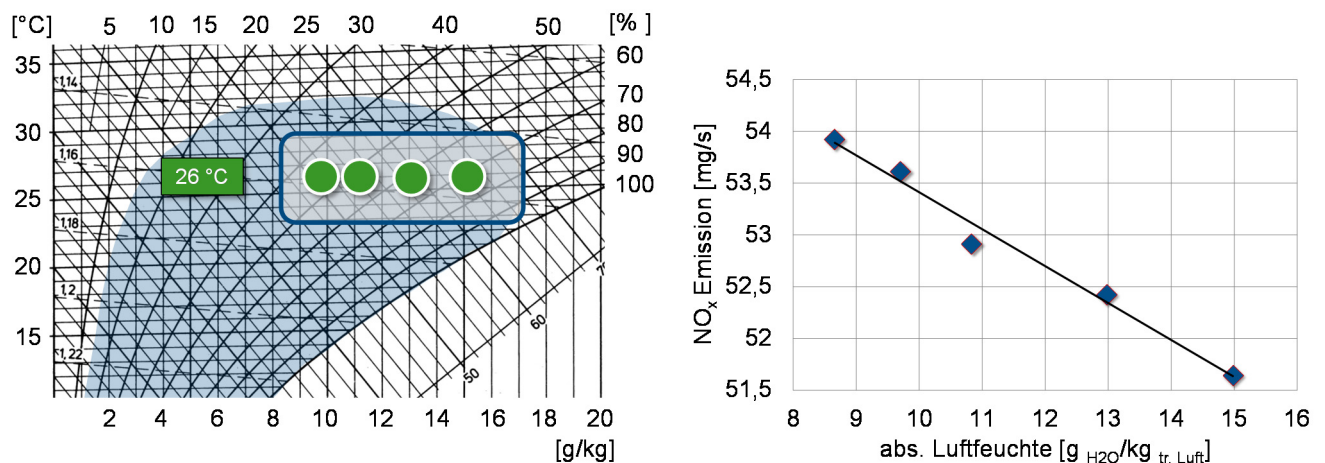


Abbildung 6-14: Mollier-h-x Diagramm für die Variation der Luftfeuchte zur NH₃ Bildung und NO_x Bildung

Für die gewählten vier Punkte liegt die relative Luftfeuchtigkeit zwischen 46,4 % und 69,9 %. Dies entspricht für die gegebenen Lufttemperatur einer absoluten Luftfeuchtigkeit von 9,82 – 15,02 g_{H2O} / kg_{tr. Luft}.

Für die Bilanzierung der an der Reaktion zur NH_3 Bildung teilnehmenden Edukte ist in Abbildung 6-15 links, der jeweilige Δ -Wert aufgetragen. Dies ist der Differenzwert der molaren Konzentrationsänderung vor TWC und nach TWC. Somit kann maximal dieser Anteil an der NH_3 Bildung beteiligt sein. Das jeweilige Flächenintegral der Δ -Werte repräsentiert die molaren Anteile der jeweiligen Stoffe für die maximale und minimale Luftfeuchtigkeit während den durchgeführten Messungen. Aufgrund der Stöchiometrie in Gleichung (6-7) ergibt sich, dass der molare Anteil an umgesetzten CO in allen Messungen zur Luftfeuchtevariation viel zu gering ist für den vorhandenen Wassergehalt in der Ansaugluft. Somit ist eine im Sinne eines Passiv SCR Systems positive Beeinflussung der NH_3 Bildung, sprich eine Erhöhung durch die Luftfeuchtigkeit auszuschließen. Umgekehrt könnte jedoch durch extreme Trocknung der Ansaugluft eine NH_3 Bildung unterbunden werden.

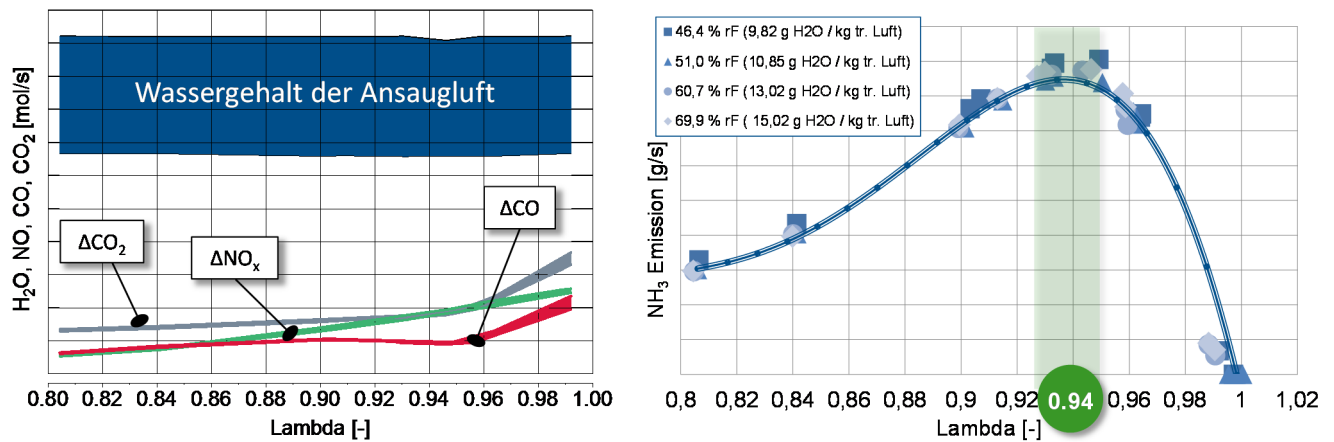


Abbildung 6-15: NH_3 Bildung durch Luftfeuchte-Variation

Der in Abbildung 6-15 rechts, dargestellte Verlauf bestätigt mit der Messung der NH_3 Formierung das Ergebnis der angestellten Bilanzierung. Eine Variation der Ansaugluftfeuchte hat keinen messbaren Einfluss auf die NH_3 Bildung. Sowohl der Absolutwert der NH_3 Emission als auch der korrespondierende Lambdawert bleiben stets konstant.

6.3.2 NH₃ Bildung mit vorgesteuertem Lambda im transienten Testzyklus

Es folgt die Übertragung der Erkenntnisse aus den stationären Untersuchungen auf den transienten Motorbetrieb. Hierzu werden im gesteuerten Motorbetrieb konstante Lambdawerte für den gesamten Testzyklus vorgegeben. Diese Lambdawerte liegen um die zuvor ermittelte Peaklage für die NH₃ Bildung. Mit Werten von $\lambda=0,98$, $0,94$ und $0,92$ soll überprüft werden, ob sich im transienten Motorbetrieb die Ergebnisse aus den stationären Messungen bestätigen lassen. Die durchfahrenen Testzyklen sind der europäische NEDC und der US-amerikanische FTP72.

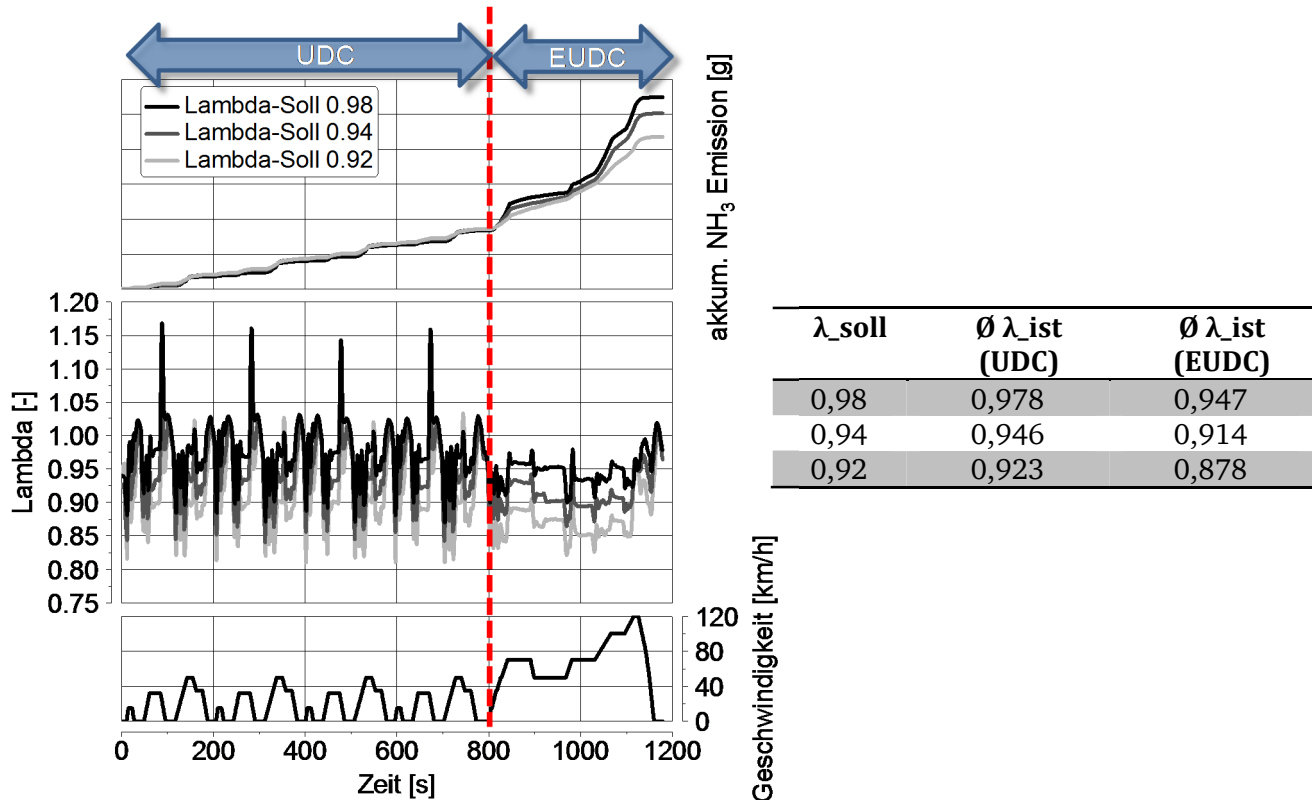


Abbildung 6-16: NH₃ Bildung mit gesteuerten Lambda im transienten Testzyklus, NEDC

Die Darstellung der akkumulierten NH₃ Emission in Abbildung 6-16 zeigt ein deutliches Verhalten, das sich mit den Erkenntnissen aus den zuvor durchgeführten stationären Messungen erklären lässt. Innerhalb des UDC Teils des NEDC liegen die Werte für das gebildete NH₃ für alle drei Lambdavariation nahezu gleich auf. Lediglich im EUDC Teil ist eine Differenzierung im NH₃ Bildungsgradienten nachzuweisen. Der Grund hierfür ist die Temperatur des TWC während des Testzyklus. Der Temperaturverlauf in Abbildung 6-13 zeigt, dass im UDC Teil lediglich in den Beschleunigungsphase hinreichend hohe Temperaturen im TWC erreicht werden, die eine NH₃ Bildung ermöglichen. So lässt sich der geringe aber stete Anstieg der akkumulierten NH₃ Emissionen in allen vier ECE-15 des UDC erklären. In dem dynamischen EUDC Teil erreicht die Temperatur im TWC das Temperaturfenster in dem die NH₃ Bildung am ausgeprägtesten ist. Eine Auffälligkeit ist, dass die höchste NH₃ Emission vermeintlich nicht mit dem vorgegebenen Lambdawert von $0,94$ erreicht wird. Der Grund hierfür ist, dass die Closed-Loop-Lambda-Regelung für die Messungen deaktiviert ist. Dies erlaubt den zuvor erläuterten manuellen Zugriff auf den Soll-Lambdawert, führt aber zu einem stark schwingenden Ist-Lambdawert. In Konsequenz kann der vorgegebene Lambdawert nicht korrekt eingeregelt werden und es kommt gerade im dynamischen EUDC Teil zu starken Abweichungen. Diese bewirken, dass der vorgegebene Lambdawert von $0,98$ tatsächlich auf ca. $0,947$ eingeregelt wird und somit dem Idealwert für die NH₃ Bildung am nächsten kommt. Somit bestätigen sich die Erkenntnisse aus den stationären Vermessungen im transienten Fahrzyklus.

Für den im Vergleich zum NEDC dynamischeren FTP72 ergibt sich ein ähnliches Ergebnis (Abbildung 6-17). Mit einem gesteuerten Lambdasollwert von 0,94 wird die höchste akkumulierte NH_3 Emission erzielt. Die Abhängigkeiten zwischen Soll-/Ist-Lambdawert sind hier weniger ausgeprägt als beim NEDC.

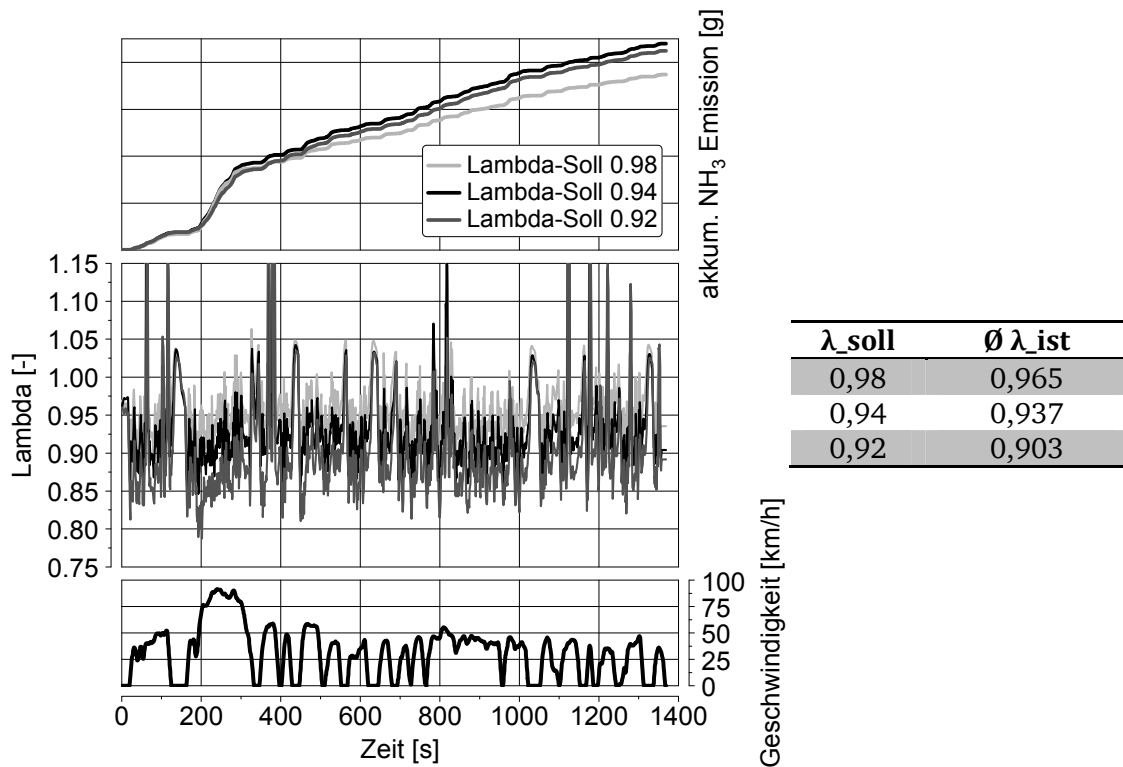


Abbildung 6-17: NH_3 Bildung mit gesteuertem Lambda im transienten Testzyklus, FTP72

Der Grund in der geringeren NH_3 Ausbeute bei $\lambda=0,98$ gegenüber $\lambda=0,92$ spiegelt sich in der NH_3 Bildungskurve gemäß Abbildung 6-11 wieder. Hierbei entscheidend ist das Trade-Off-Verhalten zwischen CO , H_2 und NO in Abhängigkeit des vorliegenden Lambdawertes. In unterstöchiometrischen Luft-/Kraftstoffverhältnissen sinken CO und H_2 mit steigendem Lambdawert. Im Gegensatz dazu steigt NO . Dieses Bildungsverhalten erfolgt asynchron mit unterschiedlichen Gradienten, was zu dem beschriebenen asymmetrischen Bildungsverlauf von NH_3 über Lambda führt. So bewirkt ein Lambdawert oberhalb des Peakwertes von 0,94 eine geringere NH_3 Bildung als ein Lambdawert unterhalb des Peakwertes.

6.3.3 Auslegung einer Betriebsstrategie für transiente Testzyklen

Ziel ist es, eine Methode zu entwickeln mit derer der Nachweis erbracht werden kann, dass ein Passiv SCR System am Mager-Ottomotor effektiv betrieben werden kann. Die Auslegung einer Strategie für den Betrieb eines Passiv SCR Systems erfordert, dass Kriterien für die Umschaltung zwischen dem über- und unterstöchiometrischen Motorbetrieb definiert werden.

In Kapitel 6.1 wurde die Rekalibrierungsprozedur für den Magerbetrieb erläutert. Die sich hieraus ergebende Herausforderung ist: ausgehend von einem Lambda $\lambda=1,3$ - $1,35$ muss der Motor in den Fettbetrieb bei $\lambda=0,94$ überführt werden. Entsprechend Abbildung 6-18 muss jedoch bei jedem Umschaltvorgang das NO_x Emissionsmaximum durchfahren werden. Dieses liegt bei etwa $\lambda=1,1$ - $1,15$. Eines der Applikationsziele ist daher diesen Bereich schnellstmöglich zu durchfahren. Denn nur so kann der Anteil an sich bildenden sekundären NO_x Emissionen, bedingt durch den Umschaltvorgang, so gering wie möglich gehalten werden. Neben der Emissionsproblematik ergibt sich eine weitere Herausforderung. Der ansteigende Kraftstoffverbrauch im Fettbetrieb verglichen mit dem Magerbetrieb

muss ebenfalls minimal gehalten werden, um nicht den eigentlichen Vorteil des Magerkonzeptes durch den Betrieb eines Passiv SCR Systems zu Nichte zu machen.

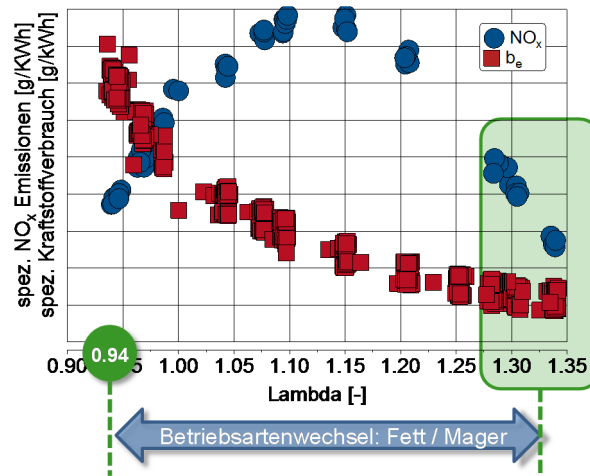


Abbildung 6-18: NO_x Emission und Kraftstoffverbrauch in Abhängigkeit von Lambda

Als Parameter für die Umschaltung wird, wie in den stationären Messungen zuvor, ein Soll-Lambdawert vorgegeben. Dieser wird in Abhängigkeit der vorliegenden Motordrehzahl und Motorlast gesteuert. Das bedeutet, dass die Eingangsgrößen in das Motorbetriebsartenmodell jeweils die gemessene Motordrehzahl und der mittels gemessenen Drehmoments berechnete effektive Mitteldruck sind. Das Drehmoment wird mit einer Kraftmessdose an der Belastungseinheit am Prüfstand gemessen. Auf ein Drehmoment-Kompensationsmodell zur Verbesserung der Motordrehmomentneutralität während des Vorgangs der Betriebsartenumschaltung, bspw. mittels erweiterter Zündwinkelkorrektur wird an dieser Stelle aus Gründen des Applikationsaufwands verzichtet.

Für eine Nutzen/Aufwand Bilanzierung wird eine Voruntersuchung durchgeführt. Zwei NEDC werden in Bezug auf die zu erwartende NH₃ Bildung und den damit verbundenen Kraftstoffmehrverbrauch analysiert. Die Datenbasis besteht aus einem NEDC mit dem Soll-Lambdawert von $\lambda=1,35$ und einem NEDC mit $\lambda=0,94$. Hieraus werden mehrere synthetische Zyklen in Abhängigkeit der eingeführten Umschaltkriterien erstellt. An dem Beispiel in Abbildung 6-19 (links) soll das methodische Vorgehen erläutert werden.

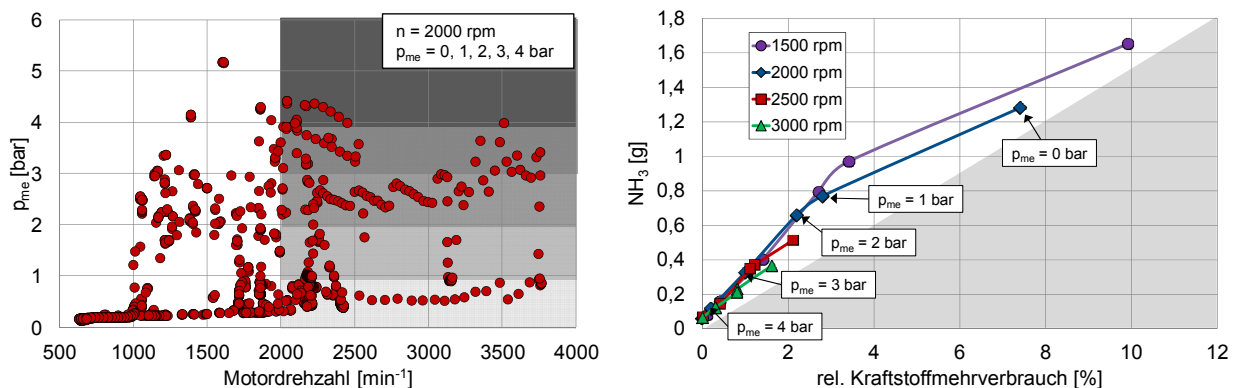


Abbildung 6-19: Lastpunktverteilung im NEDC (links), Kraftstoffmehrverbrauch vs. NH₃ Bildung im NEDC (rechts)

Die dargestellten Punkte repräsentieren die im Zyklus angefahrenen Betriebspunkte während eines NEDC. Als primäres Umschaltkriterium wird die Motordrehzahl definiert. In diesem Fall beträgt sie 2000 min⁻¹. Das sekundäre Umschaltkriterium ist der effektive Mitteldruck. Dieser wird in der Modellrechnung zwischen Werten von 0 bar und 4 bar verändert. Wobei innerhalb eines einzelnen NEDC der jeweilige Wert nicht verändert wird. Das mit dieser Methode generierte synthetische Ergebnis erlaubt

eine prädikative Abschätzung für den Realbetrieb. In Abbildung 6-19 rechts, sind diese Variationen des primären und sekundären Umschaltkriteriums dargestellt. Die Abszisse beschreibt den relativen Kraftstoffmehrerverbrauch gemessen an dem Wert eines NEDC, der rein im Magerbetrieb durchfahren wird. Der maximale Differenzwert beträgt für die beiden hier beschriebenen Betriebsarten 12 %. Auf der Ordinate ist die Menge an akkumulierten NH_3 , die während des NEDC gebildet wird, aufgetragen. Bei einem reinen Fettbetrieb lässt sich so ca. 1,8 g NH_3 generieren. Somit sind die Grenzen des Möglichen, bezogen auf die bestehende Konfiguration aus Motor, TWC und Applikationsstand der ECU am Motorprüfstand, bekannt. Um aus diesen Erkenntnissen eine effektive Umschaltstrategie abzuleiten, sollte diese erst ab einem effektiven Mitteldruck von mindestens 2 bar von Mager- auf Fettbetrieb umschalten. Außerdem ergibt sich für die Motordrehzahl, dass diese ab einem p_{me} von mindestens 2 bar keinen wesentlichen Einfluss auf die Bildung des NH_3 hat. Daher wird für die Umschaltstrategie auf das primäre Umschaltkriterium verzichtet und lediglich auf den Mitteldruck als Umschaltparameter zurückgegriffen. Aus der Analyse der synthetischen Zyklen ist mit Anwendung des definierten Umschaltkriterium ein sich einstellender Kraftstoffmehrerverbrauch von etwa 3 % und eine NH_3 Ausbeute von ca. 0,8 g zu erwarten.

Zur Bewertung der Umsetzbarkeit einer solchen Umschaltstrategie am Motorprüfstand und deren Auswirkung auf die tatsächlich gebildete NH_3 Emission werden die transienten Zyklen mit jeweils drei unterschiedlichen Umschaltdefinitionen für den effektiven Mitteldruck durchfahren.

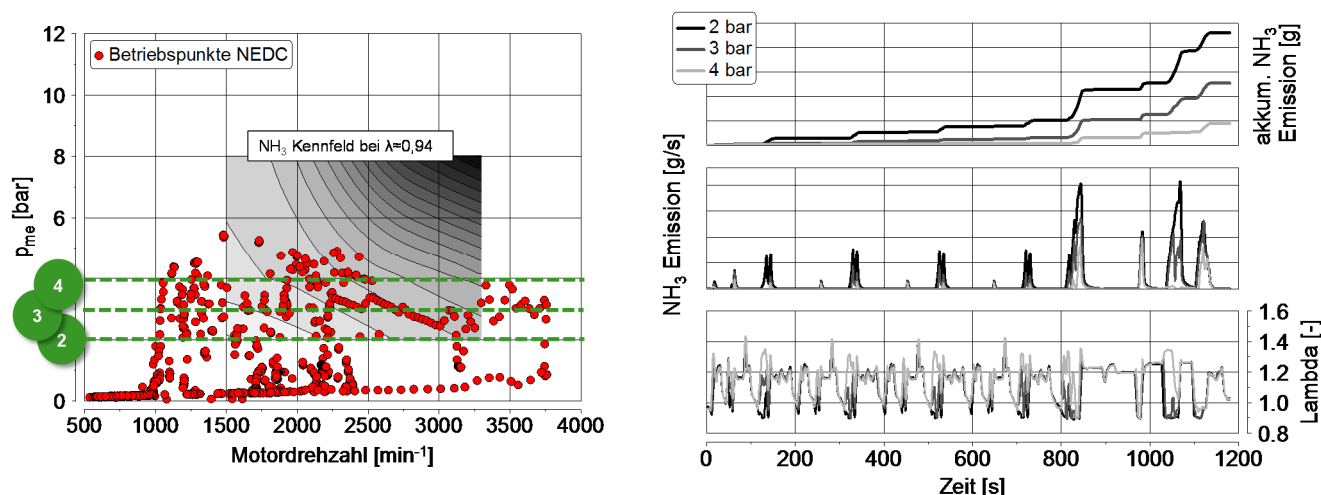


Abbildung 6-20: NH_3 Bildung in Abhängigkeit der Umschaltstrategie, NEDC

Tabelle 6-1: Betriebsartenanteile, NEDC

	überstöchiom.	unterstöchiom.
2 bar	78 %	22 %
3 bar	84 %	16 %
4 bar	94 %	6 %

Der in Abbildung 6-20 dargestellte NEDC wird jeweils mit einer Betriebsartenumschaltung bei $p_{me}=2, 3$ und 4 bar gefahren. Die jeweiligen Anteile an den beiden Fahrmodi, unterteilt in über- und unterstöchiometrisch ist in Tabelle 6-1 aufgeführt. In allen drei Betriebsstrategien ist der Anteil des Magerbetriebs dominierend. Selbst bei einer frühen Umschaltung ab $p_{me}=2$ bar liegt der Mageranteil noch bei fast 80 %. Für den Kraftstoffmehrerverbrauch kann so der vorausberechnete Wert von maximal 3 % eingehalten werden. In Bezug auf die NH_3 Bildung kann ebenfalls nachgewiesen werden, dass der Anteil an gebildetem NH_3 im realen Fahrzyklus mit dem berechneten Wert des synthetischen Zyklus korreliert. Die Ergebnisse der Messungen erlauben somit für die Auslegung der Betriebsstrategie die Festlegung des Umschaltpunktes in Abhängigkeit des effektiven Mitteldrucks. Dieser wird mit $p_{me}=2$ bar definiert. Als ergänzende Kriterien für eine Serienapplikation würde es eine Reihe weiterer Parameter bedürfen, die für eine Betriebsartenumschaltung berücksichtigt werden müssten. So zum Beispiel die aktuelle Temperatur des TWC und des SCR Katalysators. Die durchgeführten Testzyklen wurden stets mit betriebswarmen Motor und Katalysator durchgeführt. Es würden sich Einschränkungen im Systembetrieb er-

geben, wenn der Motor kalt gestartet wird. Daher muss mindestens die Light-Off-Temperatur des TWC erreicht sein.

Zur weiteren Überprüfung der Umschaltstrategie wird diese auf den FTP72 übertragen. Trotz des dynamischeren Lastprofils werden die Umschaltgrenzen nicht neu definiert. Diese liegen in der Folge ebenfalls bei $p_{me}=2, 4$ und 6 bar (Abbildung 6-21).

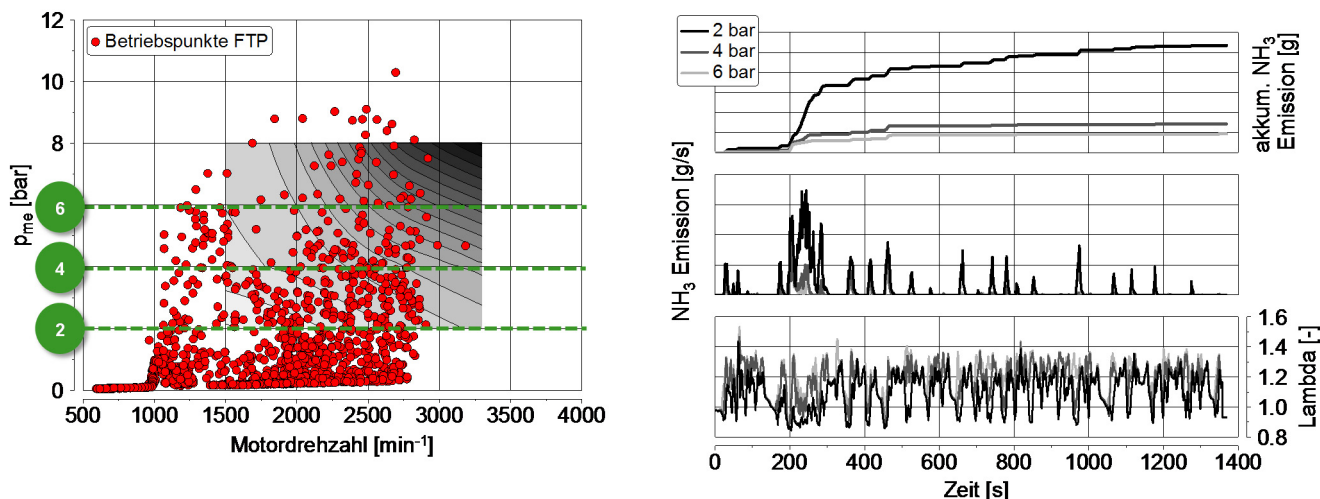


Abbildung 6-21: NH_3 Bildung in Abhängigkeit der Umschaltstrategie, FTP72

Die Ergebnisse des transienten Testzyklus bestätigen sehr gut die Ergebnisse aus den stationären Voruntersuchungen. Entsprechend dem Geschwindigkeitsverlauf (Abbildung 6-17) und dem Temperaturverlauf (Abbildung 6-13) erfolgt eine erhöhte NH_3 Bildung im Zeitfenster zwischen Sekunde 180 und 300. Hier hat die frühe Betriebsartenumschaltung einen maßgebenden Einfluss auf die erzielbare NH_3 Formierung. Der Gradient der 2 bar Umschaltung ist steiler als bei der 4 und 6 bar Umschaltung. Eine Strategie der späten Betriebsartenumschaltung, um den Vorteil der Kraftstoffeffizienz weiter beizubehalten zahlt sich für hohe Mitteldrücke nicht aus. Der Anteil an gebildetem NH_3 ist bei einer 4 bar Umschaltung nur unwesentlich höher als bei einer 6 bar Umschaltung. Jedoch ist ein starker Anstieg bei einer 2 bar Umschaltung nachweisbar. Entsprechend der Verteilung der daraus resultierenden Betriebsartenanteile sind diese vergleichbar mit denen des NEDC. Für die 2 bar Umschaltung beträgt der Mageranteil des Motorbetriebs weiterhin über 70 %. Für den Kraftstoffmehrverbrauch bedeutet dies Einbußen zwischen 3 und 4 %.

Tabelle 6-2: Betriebsartenanteile, FTP72

	überstöchiom.	unterstöchiom.
2 bar	72 %	28 %
4 bar	87 %	13 %
6 bar	96 %	4 %

6.3.4 Plausibilisierung der Betriebsstrategie

Für eine abschließende Bewertung wird das bisherige System der Abgasnachbehandlung, bestehend aus einem TWC um einen SCR Katalysator erweitert. Das Ziel ist der Nachweis, dass innerhalb eines NEDC hinreichend viel NH_3 für die erforderliche NO_x Reduzierung gebildet werden kann.

Im Vorfeld der Versuchsdurchführung wird eine theoretische Bedarfsbestimmung für das erforderliche NH_3 durchgeführt. Ausgehend von dem Limit der ab 2014 inkrafttretenden Abgasnorm Euro 6 für PKW wird der Grenzwert für NO_x bei Ottomotoren 60 mg/km betragen. Dies entspricht dem Wert, der bereits für Euro 5 bei Ottomotoren Gültigkeit hat. Bezogen auf die zurückgelegte Wegstrecke von 11 km innerhalb eines NEDC ergibt sich als obere Emissionsgrenze für den Zyklus ein Wert von $0,66 \text{ g NO}_x$ hinter den Komponenten der Abgasnachbehandlung. Wird im Weiteren ein hoher Wirkungsgrad

des SCR System angenommen, dann ist eine absolute Konvertierungsrate von 60 % realistisch. Somit dürfte der Wert an NO_x Rohemission 1,65 g betragen. Die Differenz aus beiden Werten beträgt 0,99 g NO_x und entspricht dem Betrag an NO_x, das durch NH₃ reduziert werden muss (Abbildung 6-22). Nach Formel (5-7) für das Feedverhältnis soll abgeschätzt werden wie viel NH₃ hierzu benötigt wird. Ausgehend von dem in Kapitel 6.2 bestimmten NO₂/NO_x Verhältnis hinter TWC wird die Berechnung für 25 % NO₂ und 75 % NO durchgeführt.

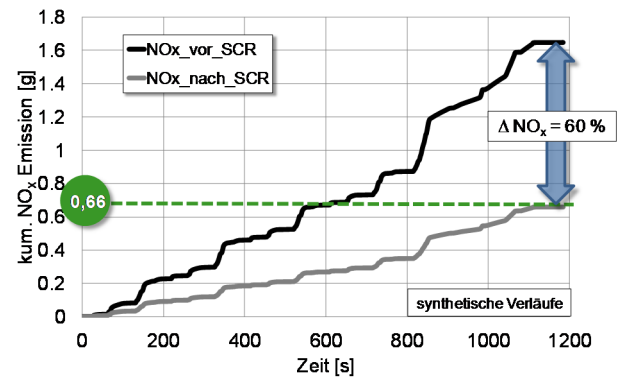


Abbildung 6-22: NH₃ Bedarfsbestimmung für den NEDC

$$m_{\text{NH}_3} = m_{\text{NO}_x} \cdot 0,497 \quad (6-9)$$

Das Ergebnis nach Gleichung (5-15) liefert einen NH₃ Bedarf von 0,49 g.

Ein Stichversuch soll zeigen, ob die Erkenntnisse aus den stationären Untersuchungen sich auf einen transienten Zyklus übertragen lassen. Hierzu wird der Abgasstrang mit einem CC TWC, UF TWC und einem SCR Katalysator (Fe-Zeolith) ausgerüstet. Der Katalysator wird vor Testbeginn konditioniert, so dass kein NH₃ eingespeichert ist. Der Zyklus selbst ist ein NEDC und wird warm gestartet ($t_{\text{SCR}}=200\text{ °C}$). Als Umschaltstrategie wird die $p_{\text{me}}=2$ bar Mager/Fett Umschaltung gewählt. Die NO_x Emissionsverläufe sind in Abbildung 6-23 dargestellt. Mit der Passiv SCR Methode wird eine absolute NO_x Umsetzung von 1,4 g erzielt. Die generierte Menge an NH₃ beträgt somit mindestens 0,69 g. Entsprechend dem prädiktiven Wert von ca. 0,8 g und der Tatsache, dass kein NH₃ Schlupf hinter SCR Katalysator erfasst wurde, kann davon ausgegangen werden, dass der Differenzanteil im SCR Katalysator eingespeichert wurde. Somit kann für einen Stichversuch nachgewiesen werden, dass für den Betrieb eines Passiv SCR Systems die Menge an gebildetem NH₃ ausreichend wäre, um ein aktives SCR System für die NO_x Reduzierung zu ersetzen. Eine Minderung des Benefits resultiert aus dem gesteigerten Kraftstoffverbrauch. Die zuvor erzielten 12 % reduzieren sich hierdurch um 3-3,5 %. Im direkten Vergleich zu der Betriebsstrategie von Hertzberg [62] für ein NO_x Speicherkatalysator (NSK) System gibt dieser einen Mehrverbrauch von 2-3 % an. Es bliebe zu untersuchen, welche DeNO_x Performance mit einem DI-Ottomotor zu erzielen wäre. Hier bestünde gegebenenfalls die Möglichkeit noch weiter abzumagern, als an dem hier verwendeten MPFI-Ottomotor. Damit könnte ein noch größerer Kraftstoffvorteil geschaffen werden und die NO_x Rohemissionen wären niedriger. Um jedoch den damit verbundenen niedrigeren Abgastemperaturen entgegenzuwirken müsste der SCR Katalysator in der motornahen Position verbaut werden. Mit Hinblick auf die Thematik der Partikelemission bei DI-Ottomotoren würde sich gegebenenfalls die Option anbieten hier einen Benzin-Partikelfilter mit SCR Beschichtung zu nutzen.

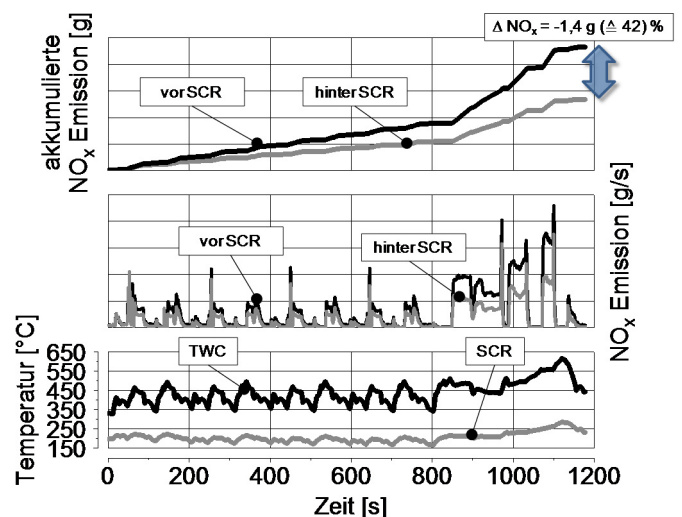


Abbildung 6-23: Passiv SCR Betriebsstrategie im NEDC Zyklus

6.4 Kapitelzusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die am Dieselmotor entwickelte Methode der NO_x Emissionsminderung mittels einem SCR System und gasförmiger NH_3 Dosierung auf einen Mager-Ottomotor übertragen und zur Anwendung gebracht. Dies erfolgte vor dem Hintergrund, dass der magerbetriebene Ottomotor in den Phasen der überstöchiometrischen Verbrennung im Teillastbereich ebenfalls den Bedarf an einer reduzierenden Umgebung für die Minderung der NO_x Emissionen hat. Der Drei-Wege-Katalysator allein kann dieser Aufgabe im sauerstoffreichen Abgas nicht nachkommen, daher stellt ein SCR System eine mögliche Ergänzung dar.

Rekalibrierung

Der für die Messungen genutzte Ottomotor verfügt über eine ECU mit Serienapplikation für den stöchiometrischen Motorbetrieb. Im ersten Schritt wurde daher eine Rekalibrierung der ECU durchgeführt, um den Motor in der Teillast im Magerzustand zu betreiben. Der Motor selbst verfügt über keine Aufladung und als Einspritzsystem kommt die serienmäßige MPFI Saugrohreinspritzung anstelle einer Direkteinspritzung zum Einsatz. Für die Unterstützung der Drallerzeugung im Brennraum ist der Motor mit einer serienmäßigen Einlassventilabschaltung ausgestattet, damit eines der beiden Einlassventile im Magerbetrieb deaktiviert werden kann. Die Applikationsarbeiten umfassten die Rekalibrierung des Lambdakennfeldes und des Zündwinkelkennfeldes. Das Applikationsziel war der größtmögliche Kraftstoffverbrauchsvorteil unter Beibehaltung der Verbrennungsstabilität. Dieser konnte aufgrund der durchgeführten Maßnahmen für den NEDC auf 12 % angehoben werden. Das übergeordnete Ziel dieser Arbeit stellte jedoch die Reduktion der vorhandenen Stickoxide im nun sauerstoffreichen Abgas dar.

Aktiv-SCR

Das Abgasnachbehandlungssystem bestehend aus einem motornahen TWC und einem Unterboden TWC wurde um einen Unterboden SCR Katalysator und ein externes NH_3 Dosiersystem ergänzt. Bei der Untersuchung unterschiedlicher Beschichtungen der verwendeten Drei-Wege-Katalysatoren konnte kein NO_2/NO_x Verhältnis über 0,25 vor dem SCR Katalysator gemessen werden. Des Weiteren war aufgrund der eingeschränkten Möglichkeit zur Abmagerung des MPFI Motors eine nur geringe Anhebung des Lambdawertes auf $\lambda=1,3$ - $1,35$ möglich. Dies führt dazu, dass eine erhöhte NO_x Konzentration im Abgas vorliegt, was eine große Herausforderung an die Applikation des SCR Systems darstellt. Trotz der hohen absoluten Umsatzraten der untersuchten Fe- und Cu-Zeolith SCR Katalysatoren werden für die relative Umsatzraten nur geringe Werte erzielt. Im warmgestarteten NEDC liegt die DeNO_x Performance nur bei 25 %.

Passiv SCR

Ziel ist es möglichst auf eine aktive Dosierung von NH_3 als Reagenz zu verzichten. Dafür wurde eine Methodik entwickelt, die eine NO_x Emissionsminderung basierend auf dem Betrieb eines Passiv SCR Systems ermöglicht. Das als Reagenz benötigte NH_3 wird hierzu direkt on-board bei Bedarf gebildet. Folgendes chemisches Grundprinzip wurde dazu genutzt: im Fettbetrieb des Motors werden unter Sauerstoffmangel die entstehenden CO, HC und NO Emissionen über dem mit Platin und Palladium beschichteten TWC anteilig zu NH_3 konvertiert. Dieses NH_3 kann wiederum im SCR Katalysator für die Phasen des Magerbetriebs, wenn es für die NO_x Reduzierung benötigt wird, eingespeichert werden. Zur Methodikentwicklung wurden zunächst die Randbedingungen der NH_3 Bildung identifiziert. Als Ergebnis der analysierten Motor/Abgaskombination kann für die Abgaszusammensetzung ein Lambdawert von $\lambda=0,94$ als optimal für die NH_3 Bildung angesehen werden. In Abhängigkeit des ermittelten Lambdawertes wurde die Temperaturabhängigkeit untersucht. Der optimale Temperaturbereich des TWC konnte somit auf 420-600 °C bestimmt werden. Des Weiteren wurde untersucht, ob sich durch eine Anpassung des Feuchtegehalts der Ansaugluft Einfluss auf die Bildung von NH_3 nehmen lässt. Folgender Theorie wird hierbei nachgegangen: durch einen erhöhten Wassergehalt der Ansaugluft wird eine Steigerung der NH_3 Formierung erreicht. Tatsächlich lässt sich nachweisen, dass der typische Feuchtegehalt der Ansaugluft bereits einen solch hohen Wasseranteil hat, dass dieser über dem

maximalen Bedarf für die Bildungsreaktionen liegt. Lediglich für den Fall einer extrem trockenen Ansaugluft hätte dies gegebenenfalls einen nachteiligen Einfluss auf die NH_3 Formierung. Zur Validierung der entwickelten Methode für den Betrieb eines Passiv SCR Systems konnte für einen warmgestarteten NEDC in einem Stichversuch nachgewiesen werden, dass die Menge des on-board gebildeten NH_3 ausreichend ist für die Reduktion der NO_x Emissionen. Die Betriebsstrategie, die hierzu appliziert wurde, sieht eine Betriebsartenumschaltung in Abhängigkeit des effektiven Mitteldrucks vor. Dieser ist auf den Bereich oberhalb von $p_{\text{me}}=2$ bar definiert. Ein nachteiliger Effekt, der hiermit verbunden ist, ist der Anstieg des Kraftstoffverbrauchs. Dieser beträgt ca 3 % und liegt damit im Bereich der Betriebsstrategien für Systeme mit NO_x Speicherkatalysatoren, die typischerweise mit 2-3 % Mehrverbrauch angegeben werden [62]. Absolut gesehen bleibt ein Kraftstoffverbrauchsvorteil von ca. 8-9 % erhalten. Hinzu kommt, dass auf ein separates Reagenzmittel verzichtet werden kann.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der Systembetrachtung und der Potentialabschätzung zur Anwendbarkeit einer gasförmigen NH_3 Dosierung für SCR Systeme, als effektive Alternative zu aktuellen SCR Systemen auf der Basis von AdBlue®, wurden eingehende Untersuchungen durchgeführt. Diese umfassten die Analyse der Systemeigenschaften eines noch nicht am Markt verfügbaren Prototyps. Hierzu wurde unter anderem das Systemverhalten in Abhängigkeit des Reagenzfüllstandes untersucht. Der Grund hierfür ist das Prinzip der Bereitstellung des Ammoniaks für die Dosierung. Aus sicherheitstechnischen Gründen ist das gasförmige NH_3 in die Kristallstruktur eines Feststoff-Trägermaterials gebunden. Dieses Trägermaterial ist Strontiumchlorid. Erst durch die Zufuhr von Wärmeenergie desorbiert das NH_3 und steht zur Verfügung. Dieser Prozess der Bereitstellung des Reagenz ist anders als bei flüssigen SCR Systemen sehr stark von der vorhandenen Restmenge des Reagenzes und dem vorherrschenden Initialdruck in dem Bevorratungsbehälter (Start-Up Unit) abhängig. Mit den Messungen konnte nachgewiesen werden, dass bei vollem Füllstand, einer Umgebungstemperatur von 20 °C und einem Initialdruck auf Umgebungsniveau das System eine Aufheizzeit bis zur Systembereitschaft von bis zu 60 s benötigt. Mit Abnahme des Füllstandes in der Start-Up Unit auf 20 % steigt diese auf nahezu 250 s an. Diese Zeitanlagen stellen die maximalen Startzeiten dar. Ist das System vorkonditioniert - liegt ein erhöhter Initialdruck in der Start-Up Unit vor - verringert sich die Startzeit des Systems. Als geringste Startzeit kann so bei gefüllter Start-Up Unit eine Zeit von 15 s erreicht werden. Für die Gesamtbetrachtung bedeutet dies folgendes: Bei einem Kaltstart des Motors mit kaltem SCR Katalysator ist die Aufheizzeit des Systems zur Dosierbereitschaft stets geringer als die Aufheizzeit des SCR Katalysators bis dieser die Light-Off-Temperatur erreicht hat. Dies gilt sowohl für Unterboden SCR als auch für motornahe SCRF Katalysatoren. Der Prozess der Entleerung und Befüllung der Start-Up Unit ist reversibel. Die Nachspeisung der Start-Up Unit mit NH_3 erfolgt über einen weiteren Bevorratungsbehälter (Main-Unit), der ebenfalls Bestandteil des Gesamtsystems ist.

In der Komponentenkette eines SCR Dosiersystems ist die NH_3 Düse zwar das letzte Glied hat aber eine ganz wichtige Funktion. Sie bestimmt neben dem Mischelement maßgeblich über die Güte der Homogenisierung des dosierten NH_3 mit dem Abgas. Im Rahmen der Arbeit wurden drei unterschiedliche Düsengeometrien entwickelt und am Strömungs- und Motorprüfstand in Bezug auf die sich einstellende Gleichverteilung des Gemisches untersucht. Die entworfenen Konzepte unterscheiden sich jeweils in der Orientierung der Geschwindigkeitsvektoren des dosierten NH_3 . Die gerade Düse dosiert rein axial zum Abgasstrom ein. Die L-Profil Düse dosiert rein radial, von der Mitte nach außen hin zur Innenwand des Abgasrohres und die Ring-Düse ist eine Kombination aus radialer und axialer Ausrichtung mit der Dosierung von außen nach innen. Die Messergebnisse belegen eine hohe Abhängigkeit des sich einstellenden Homogenisierungsgrades von dem Abgasmassenstrom. So ist bspw. bei Verwendung der L-Profil Düse mit steigendem Abgasmassenstrom eine Einschnürung der Stromlinien verbunden. Letztlich kann in Messungen belegt werden, dass sowohl für den stationären als auch für den transienten Motorbetrieb die gerade Stabdüse trotz ihrer Einfachheit ausreichend gute Resultate für die Gleichverteilung liefert. Daher wurde sie in der Folge für alle weiteren Messungen am Unterboden SCR System verwendet.

Als weiteres Element der Entwicklungsmethodik wurde eine Dosierstrategie mit unterschiedlichen Betriebsmodi erarbeitet. Zum einen kann sie als open-loop α -Steuerung oder als closed-loop Regelung genutzt werden. Zusätzlich umfasst die Applikation eine Hybrid-Betriebsstrategie, so dass diese sowohl für gasförmige als auch für flüssige Dosiersysteme eingesetzt werden kann. Basis hierfür ist eine detaillierte Identifikation des Systemverhaltens der Abgassensorik für NO_x und NH_3 bezüglich deren Quersensitivitäten und Ansprechverhalten. Mit diesen Erkenntnissen und denen bezüglich dem Systemverhalten der eingesetzten Katalysatoren wurde unter anderem ein empirisches NO_2/NO_x Modell und Regelstrukturen für die Dosiermengenvorgabe erstellt. Die Funktionalität dieser Dosierstrategie wurde am Motorprüfstand mit einer Eigenentwicklung eines Dosiersystems für den selektiven Betrieb von gasförmigen oder flüssigen Reagenz bestätigt.

Nach Abschluss dieser Vorarbeiten und Voruntersuchungen erfolgte der direkte Vergleich zwischen der flüssigen AdBlue® und der gasförmigen NH_3 Reagenzdosierung zur Bewertung der De NO_x Perfor-

mance. Die Möglichkeit der Dosierung bei geringeren Abgastemperaturen führt zu einer früheren Dosierfreigabe bei gasförmigen NH_3 . Für die untersuchte Motor/Abgasnachbehandlung-Konfiguration bedeutet dies ein Zeitvorteil von 100 s im FTP75 und 170 s im NEDC gegenüber einer AdBlue® Dosierung bei einem Motorkaltstart. Dies spiegelt sich entsprechend in der DeNO_x Performance für die transienten Testzyklen wider. Im Falle eines leeren SCR Katalysators kann bei gasförmiger NH_3 Dosierung die NO_x Konvertierungsrate im FTP75 um 10 % gesteigert werden. Im NEDC sind es immer noch 4 %. Dieser Vorteil reduziert sich jedoch, wenn der SCR Katalysator mit NH_3 vorgeladen ist. So bleiben nur noch 6 % im FTP75 und 1 % im NEDC übrig. Die Begründung hierfür ist, dass durch die NH_3 Vorbeladung die Niedertemperaturaktivität des Katalysators zur NO_x Konvertierung unabhängig vom Zeitpunkt der Dosierfreigabe erfolgt.

Ein Aspekt welcher bei der Reagenzdosierung zu berücksichtigen ist, ist die Bildung von Ablagerungen. Im Unterschied zu der Dosierung von AdBlue® bei zu geringen Temperaturen, bei der es zu Ablagerungen innerhalb des Abgasrohres an dem Injektor und gegebenenfalls an der Eintrittsseite des SCR Katalysators kommen kann, können sich bei der gasförmigen NH_3 Dosierung unter Umständen Ablagerungen in der Zuleitung außerhalb des Abgasrohres bilden, die zu einem Verschluss führen können. In der chemischen Analyse mittels einem Röntgenpulverdiffraktogramm konnte die Bildung von Ammoniumhydrogencarbonat NH_4HCO_3 nachgewiesen werden. Diese Verbindung entsteht bei der Reaktion von NH_3 mit H_2O und CO_2 . Hierzu kann es kommen, wenn Abgas über die offenen Bohrungen der NH_3 Düse in die kalte Zuleitung gelangt und dort kondensiert. Zur Vermeidung dieser Sedimentbildung ist der Abschnitt der NH_3 führenden Leitung hin zur Düse, bspw. durch ein Rückschlagventil möglichst kurz auszuführen. Auf diese Weise kann gewährleistet werden, dass der Bereich, in den das Abgas theoretisch bei einer NH_3 Nulldosierung gelangen kann ausreichend warm ist. Denn die Bildung von festem Ammoniumhydrogencarbonat erfolgt bei Temperaturen unter 60 °C.

Als Fazit lässt sich aus dem durchgeführten Vergleich zwischen gasförmiger und flüssiger Reagenzdosierung der Schluss ziehen, dass aufgrund der Summe der positiven Eigenschaften und der erzielten besseren DeNO_x Performance eine gasförmige NH_3 Dosierung zu einer effektiveren NO_x Emissionsminderung beitragen kann.

Das Potential eines motornahen SCR-on-DPF (SCRf) System wurde im Vergleich zu einem Unterboden SCR System untersucht und bewertet. Hierzu wurde anstelle des Standard-Dieselpartikelfilters ein Dieselpartikelfilter mit zusätzlicher SCR Beschichtung verbaut. Am Beispiel des FTP75 kann so, im Vergleich zu einer Unterboden SCR Anwendung, die Light-Off Temperatur des SCRf Katalysators 80 s früher erreicht werden und das Betriebstemperaturniveau um etwa 30-40 °C gesteigert werden. Für die Reagenzdosierung kam auch hier gasförmiges NH_3 zum Einsatz. Aufgrund der Tatsache, dass für die Mischstrecke zwischen DOC und SCRf nur 75 mm zur Verfügung stehen wurde ein neues Dosier-Misch-Konzept entwickelt. Hierzu wurden insgesamt vier unterschiedliche Geometrieformen entworfen und in der CFD Simulation in Bezug auf Gleichverteilung und Gegendruck analysiert und in iterativen Optimierungsschleifen optimiert. Die vielversprechendste Variante wurde als Prototyp gefertigt und mit einem industriellen Prototyp für die AdBlue® Dosierung verglichen. Es konnte am Strömungsprüfstand nachgewiesen werden, dass das entwickelte NH_3 Dosiermodul einen um den Faktor 4 geringeren Gegendruck im Abgassystem erzeugt. Bezüglich der Güte der Gleichverteilung und der sich einstellenden DeNO_x Performance am Motorprüfstand in stationären und transienten Messungen zeigten sich die folgenden Erkenntnisse:

- Das Druckverhältnis aus Reagenzmassenstrom und Abgasmassenstrom darf kein negatives Druckgefälle aufweisen, da sonst Abgas in das NH_3 Dosiermodul eindringt und die Gleichverteilung nachteilig beeinflusst.
- Besonders bei niedrigen Abgastemperaturen (175 °C) ist die T_{50} und die T_{90} Zeit bis zum Erreichen der maximalen NO_x Konvertierung des Katalysators um etwa den Faktor 10 bei einer Dosierung von gasförmigen NH_3 kürzer. Dieser Unterschied in der Dynamik des Konvertierungsverhaltens gleicht sich hin zu höheren Abgastemperaturen wieder aus.

- Das Ergebnis der DeNO_x Performance im kaltgestarteten FTP72 Zyklus ohne eine NH₃ Vorbeladung und mit gleicher Dosierfreigabetemperatur (180 °C) sowohl für die AdBlue® als auch für die NH₃ Dosierung ergibt geringe Vorteile für das flüssige System. Zu erklären ist dies mit den beiden zuvor gelisteten Punkten.

An Hand der durchgeführten Untersuchungen konnte der Nachweis erbracht werden, dass sich auch bei motornahen SCRF Anwendungen mit einer gasförmigen NH₃ Dosierung gute Ergebnisse erzielen lassen. Hierbei zeigte sich weiteres Potential für zukünftige Entwicklungen. Aufgrund des wesentlich höheren Abgasgegendruckniveaus vor einem motornahen SCRF Katalysator gegenüber einem SCR Katalysator im Unterbodenbereich, ist das Druckgefälle für die sich einstellende Gleichverteilung entscheidend. Dies muss entweder in der Auslegung der Geometrie des NH₃ Dosiermoduls, dem Systemdruck des Dosiermoduls oder der Dosierstrategie berücksichtigt werden. Darüber hinaus ist zu untersuchen, wie sich der Rußeintrag über den SCRF Katalysator darstellt. Kommt es hier ebenfalls zu einer homogenen Verteilung oder bilden sich lokale Verdichtungen aus, die sich wiederum auf das Regenerationsverhalten auswirken.

Die Betriebseigenschaften von SCRF Katalysatoren wurden in einer Parameterstudie identifiziert. Es wurden vor allem die primären Einflussparameter (Volumen, Washcoatbeladung, Substrat) untersucht. In Bezug auf die DeNO_x Performance hat das Volumen des Katalysators den größten Einfluss. Hierbei wirkt sich die NH₃ Speicherkapazität in Abhängigkeit des Volumens aus. Dies hat besonders bei Motorkaltstarts einen positiven Effekt auf die zu erzielende NO_x Konvertierungsrate. Außerdem ist es bei Verwendung eines zusätzlichen SCR Katalysators möglich, die Washcoatbeladung auf dem SCRF Katalysator zu reduzieren ohne große Nachteile in der DeNO_x Performance zu haben. Bei gegebener Volumenäquivalenz und gleicher Washcoatmenge kann mit einer Kombination aus motornahem SCRF und SCR Katalysator eine annähernd gleiche DeNO_x Performance im transienten Betrieb erreicht werden wie mit einem reinen SCR Katalysator. Es zeigte sich jedoch, dass die Reihenfolge der Substrate SCRF und SCR, im Abgasstrang Einfluss auf die NO_x Konvertierung haben. Für stationäre Betriebspunkte empfiehlt sich daher die Anordnung SCRF vor SCR. Hier begünstigt der zusätzliche Mischeffekt innerhalb des SCRF Katalysators die DeNO_x Performance hinter dem SCR Katalysator. Anders ist es bei einem kaltgestarteten transienten Fahrzyklus. Hier hat es Vorteile den SCR Katalysator vor den SCRF Katalysator zu positionieren. Die höhere Washcoatbeladung und somit die Möglichkeit der höheren NH₃ Vorbeladung begünstigen trotz kleinerem Volumen und einer geringeren thermischen Masse eine bessere DeNO_x Performance.

Für die abschließende Bewertung der Betriebseigenschaften von SCRF Katalysatoren bedarf es in weiteren Arbeiten der Analyse der sekundären Einflussparameter. Diese sollten vor allem die Auswirkungen von chemischen Effekten, wie z.B. eine Schwefelvergiftung, eine Platinvergiftung, eine etwaige Desaktivierung durch Kraftstoffadditive und den Eintrag von Asche und Ruß umfassen. Insbesondere die Auswirkungen von Ruß sind zu untersuchen, ob es in Abhängigkeit der Rußbeladung eine Beeinträchtigung in der DeNO_x Performance gibt. Und als Konsequenz zu den häufig erforderlichen Regenerationsphasen ist die Auswirkung des thermischen Alterungsprozesses auf die NO_x Konvertierungseffizienz zu untersuchen.

Als besonderer Aspekt der Arbeit wurde die für den Dieselmotor entwickelte Methode der gasförmigen NH₃ Dosierung auf einen Mager-Ottomotor übertragen. Dazu wurde dieser vom ursprünglich stöchiometrischen auf den überstöchiometrischen Betrieb in der Teillast rekaliert und mit einem Lambda von $\lambda=1,3-1,35$ betrieben. Der Kraftstoffverbrauch konnte durch diese Maßnahme für den NEDC um 12 % gesenkt werden. Für die Abgasnachbehandlung der Stickoxide wurde ein aktives Unterboden SCR System eingesetzt. Die erzielte DeNO_x Performance war jedoch wesentlich geringer, als bei dieselmotorischen Anwendungen. Folgende Gründe konnten hierfür ermittelt werden: Das durch die Drei-Wege-Katalysatoren beeinflusste NO₂/NO_x Verhältnis liegt bei maximal 0,25 bei einer Temperatur von 400 °C hinter dem Unterboden-Drei-Wege-Katalysator. Hin zu höheren und zu niedrigeren Temperaturen fällt dieser Wert mit jeweils steilen Gradienten ab. Damit steht für eine effektive SCR

Reaktion zu wenig NO_2 zur Verfügung. Ebenfalls ist das Abgastemperaturniveau im Magerbetrieb geringer als im stöchiometrischen Betrieb.

Abschließend wurde in einer Potentialstudie die Umsetzbarkeit eines passiven SCR Systems als Systemergänzung am Mager-Ottomotor untersucht. Die on-board Bildung von Ammoniak erreichte in den unterstöchiometrischen Betriebsphasen bei einem Lambda von $\lambda=0,94$ das Maximum. Die Temperatur des motornahen Drei-Wege-Katalysators sollte hierzu zwischen 420-600 °C betragen. Generell ist die on-board Bildung von NH_3 abhängig vom Vorhandensein von Wasser. Eine direkte Abhängigkeit von der Luftfeuchte, wie beispielsweise für die NO_x Bildung, kann jedoch nahezu ausgeschlossen werden. In einem Stichversuch für den NEDC konnte mit einer Fett-/Magerumschaltstrategie in Abhängigkeit des effektiven Mitteldruckes bei $p_{me}=2$ bar nachgewiesen werden, dass die Menge an theoretisch benötigtem NH_3 für eine effektive NO_x Konvertierung auf diese Weise gebildet werden kann. Der damit verbundene Kraftstoffnachteil beträgt ca. 3 % und entspricht somit dem Niveau eines NO_x Speicherkatsystems.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass im Rahmen dieser Arbeit ein methodischer Ansatz zur Entwicklung von SCR und SCRf Systemen mit gasförmiger NH_3 Dosierung vorgestellt werden konnten.

Obwohl der technische Nachweis zur Effizienzsteigerung der De NO_x Performance eines gasförmigen NH_3 Dosiersystems gegenüber einem flüssigen AdBlue® System, sowohl für Unterboden SCR als auch für motornahe SCRf Anwendungen erbracht werden konnte, bleibt es abzuwarten, wie sich die zukünftige Nutzung im Feld darstellen lässt. Hierbei müssen neben den wirtschaftlichen Aspekten auch Fragen zur Infrastruktur für die Versorgung und den Kundenservice berücksichtigt werden. Zudem bedarf es letztlich der Akzeptanz durch den Kunden.



V. Literaturverzeichnis

- [01] Kraftfahrt-Bundesamt: Pressemitteilung Nr. 08/2012 - Fahrzeugneuzulassungen im März 2012
- [02] Spurk, P.: Über die Stickoxidreduzierung an Nutzfahrzeug-Direkteinspritz-Dieselmotoren im stationären und dynamischen Motorbetrieb; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 1999
- [03] Abthoff, J., Schuster, H.D., Zahn, W.: Möglichkeiten der Katalysatorprüfung durch Messung der Sauerstoffspeicherfähigkeit; Technischer Bericht; Daimler Benz AG; Stuttgart; 1987
- [04] Kolke, H.: Möglichkeiten der Stickoxidminderung bei Fahrzeugen und notwendige Rahmenbedingungen; Fachtagung „Herausforderung NO₂-Immission Gesetzgebung, Luftbelastung, Lösungen“; Heidelberg; 2010
- [05] Scholz, W.: NO₂-Immissionsbelastung in Deutschland und Baden-Württemberg; Fachtagung „Herausforderung NO₂-Immission Gesetzgebung, Luftbelastung, Lösungen“; Heidelberg; 2010
- [06] 22. BImSchV: Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft vom 11.09.2002
- [07] 1999/30/EG: Richtlinie 1999/39/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid, Partikel und Blei in der Luft; Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaft; 1999
- [08] Luftqualität in Deutschland - vorläufige Auswertung; Umweltbundesamt; Dessau-Roßlau; 2012
- [09] Hutziger, O.: Umweltwissenschaft und Schadstoffforschung - Was ist ein Schadstoff?; Volume 3; Nummer 5 (1991); 259; DOI: 10.1007/BF02396713
- [10] Beidl, C.: Skriptum Verbrennungskraftmaschinen I+II; Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe; Technische Universität Darmstadt; 2012
- [11] Posati, O.: Das Geheimnis um Lambda; 2. erweiterte Auflage; NGK Spark Plug Europe GmbH; 2012
- [12] Gerhard, S.: Start-Stopp Betrieb beim PKW-Dieselmotor - Einfluss auf Komfort, Effizienz und Abgasnachbehandlung; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2009
- [13] Gärtner, U.: Die Simulation der Stickoxid-Bildung in Nutzfahrzeug-Dieselmotoren; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2001.
- [14] Sabathil, D.: Beitrag zur NO_x-Simulation eines Ottomotors im Instationärbetrieb; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2010

-
- [15] Waldbüßer, N.: NO_x-Minderung am PKW-Dieselmotor mit einem Kombinationssystem zur Abgasnachbehandlung; Dissertation; Technische Universität Kaiserslautern; 2005
- [16] Schintzel, K.: Kohlenwasserstoff-Emissionen eines Motors mit Benzin-Direkteinspritzung und wandgeführtem Brennverfahren; Dissertation; Otto-von-Guericke Universität Magdeburg; 2005
- [17] Bignion, E. et al.: Investigation of the Top Land Crevice Geometry on Hydrocarbon Emissions from SI Engines; SAE Paper 982559; Seiten 125-134; 1998
- [18] Klawatsch, D.: Thermodynamische Ursachen der hohen HC-Emissionen bei kleinvolumigen Ottomotoren; 5. Tagung: Der Arbeitsprozess des Verbrennungsmotors; Technische Universität Graz; 1995
- [19] Keeling, R.F.; Piper, S.C.; Bollenbacher, A.F.; Walker, S.J.: Atmospheric CO₂ values (ppm) derived from in situ air samples collected at Mauna Loa, Hawaii, USA; Carbon Dioxide Research Group; Scripps Institution of Oceanography (SIO); University of La Jolla; CA; USA; 2008
- [20] Marland, G.; Boden, T.A., Andres, R.J.: Global, Regional and National Fossil Fuel CO₂ Emissions. In Trends: "A Compendium of Data on Global Change."; CDIC; Oak Ridge National Laboratory; U.S. Department of Energy Oak Ridge; TN; USA; 2008
- [21] Görgen, R.: Aktivitäten der Bundesregierung zur Minderung der NO₂-Belastung; Fachtagung "Herausforderung NO₂-Immission Gesetzgebung, Luftbelastung, Lösungen"; Heidelberg; 2010
- [22] Lutz, M.: NO₂ Belastung in deutschen Kommunen: Situation, Maßnahmen, Fortschritte, Probleme am Beispiel Berlin; Fachtagung "Herausforderung NO₂-Immission Gesetzgebung, Luftbelastung, Lösungen"; Heidelberg; 2010
- [23] Landeshauptstadt Düsseldorf - Luftschadstoffe und ihre Wirkungen, Düsseldorf 2011, verfügbar unter:
<http://www.duesseldorf.de/umweltamt/luft/luftschadstoffe.shtml>,
letzter Zugriff: 07.03.2012
- [24] EG 1272/2008: VERORDNUNG DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 16. Dezember 2008 über die Einstufung, Kennzeichnung und Verpackung von Stoffen und Gemischen, zur Änderung und Aufhebung der Richtlinien
- [25] Merker, G.; Schwarz, C.; Teichmann, R.: Grundlagen Verbrennungsmotoren; Vieweg + Teubner Verlag; 5. Auflage; Wiesbaden; 2011
- [26] Müller, W.: Ressourcen- und Kosteneffizienz für Abgasnachbehandlungssysteme; VDI-Fachkonferenz 07.+ 08.12.2010; Stuttgart - Bad Cannstatt; 2010
- [27] Eichelseder, H; Dinkelacker, F., Sams, T.: Grundlagen Verbrennungsmotoren. ATZ-MTZ Fachbuch; 5. Auflage 2011; Vieweg + Teubner Verlag; ISBN 3-8348-1393-1

-
- [28] Weirich, M.: NO_x-Reduzierung mit Hilfe des SCR-Verfahrens am Ottomotor mit Direkteinspritzung; Dissertation; Technische Universität Kaiserslautern; 2001
- [29] Witten, J.,: Stickstoffdioxid (NO₂); Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie; Wiesbaden; 2006
- [30] Lahl, U.; Lambrecht, U.: Hohe NO₂-Belastungen: für Dieselaabgase weiterhin Handlungsbedarf; Technischer Kongress 2008; Verband der Automobilindustrie; 2008
- [31] Bayerisches Landesamt für Umweltschutz: Information über Abgase des Kraftfahrzeugverkehrs; München; 2003
- [32] NRW: Ozon; Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen; verfügbar unter: <http://www.umwelt.nrw.de/umwelt/luftqualitaet/ozon/bodennah.php>; letzter Zugriff: 08.03.2012
- [33] EU: Richtlinie 2005/78/EG der Kommission. Amtsblatt der Europäischen Union; 14.11.2005
- [34] Wirth, R.: Dieselmotor-Management im Überblick, Abgasnachbehandlung; Vieweg + Teubner Verlag; DOI: 10.1007/978-3-8348-9716-9-15; 2010
- [35] Der Brockhaus – Gesundheit; ISBN 978-3-577-17399-5; 2010
- [36] Schmid, P.: Untersuchung der gravimetrischen Partikelmessstechnik im Hinblick auf zukünftige Abgasgrenzwerte; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2001
- [37] Steigerwald, K.: Entwicklung eines Teilstromverdünnungssystems für die Partikelmessung am instationär betriebenen Dieselmotor; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2008
- [38] Smith, O.I.: Fundamentals of Soot Formation in Flames with Application to Diesel Engine Particulate Emission; Progress in Energy Combustion Science; 1981
- [39] Flaig, B.; Beyer, U.; André, M.-O.: Abgasrückführung bei Ottomotoren mit Direkteinspritzung; MTZ 01/2010; 71. Jahrgang; 2010
- [40] Ganser, J.; Blaxill, H.; Cairns, A.: Hochlast-AGR am turboaufgeladenen Ottomotor; MTZ 08/2007; Jahrgang 68, 2007
- [41] Lanzerath, P.: Alterungsmechanismen von Abgaskatalysatoren für Nutzfahrzeug-Dieselmotoren; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2011
- [42] Gärtner, U.; Oelschlegen, H.: Innermotorische Potentiale zur Partikel-Reduktion bei Heavy-Duty-Dieselmotoren; AVL Forum Partikelemissionen; Nürnberg; 2002

-
- [43] Teetz, C.; Bergmann, D.; Schneemann, A.; Eichmeier, J.: HCCI-Motor von MTU mit geringen Rohemissionen; MTZ 09/2012; 73. Jahrgang; 2012
- [44] Mahr, B.; Taylor, J.; Bassett, M.: Kraftstoffverbrauchsvorteile im realen Fahrbetrieb durch Abgasrückführung bei modernen Downsizing-Motoren; MTZ Fachtagung: Der Antrieb von morgen; 2012
- [45] Bagende, M.; Essers, U.: Dieselmotorentechnik; Expert Verlag; ISBN 3-8169-2035-7; 2002
- [46] Genieser, P.; Elsässer, A.; Gurney, D.; Warth, M.: Systementwicklung für zukünftige PKW-Dieselmotoren; MTZ 10/2010; 2010
- [47] Hagelüken, Ch.: Autoabgaskatalysatoren Grundlagen-Herstellung-Entwicklung-Recycling-Ökologie; Expert Verlag; 2. Auflage; ISBN 3-8169-2488-3; 2005
- [48] Kim, Ch., et al.: The Effect of Pt-Pd Ratio on Oxidation Catalysts Under Simulated Diesel Exhaust; SAE Technical Paper; SAE 2011-01-1134; 2011
- [49] Kim, Ch. et al.: Catalyst Design for Urea-less Passive Ammonia SCR Lean-Burn SIDI Aftertreatment System; Deer Conference; 2010
- [50] Friedrich, H.: Neue Abgasnormen - Anforderungen an Baumaschinen; 5. Tag der Deutschen Baumaschinen; 27.10.2011; Bau-ABC Rosturp; 2011
- [51] Schäffner, G., Rusch, K., Chatterjee, D., Zitzler, G.: Dieselpartikelfilter: Abgasnachbehandlung zur Verringerung von Rußemissionen; MTU Friedrichshafen GmbH; August 2011
- [52] Harris, T., et al.: Engine Test Protocol for Accelerated Ash Loading of a Diesel Particulate Filter; SAE Technical Paper; SAE 2011-01-0607; 2011
- [53] Gietzelt, Ch.: Abgasqualitätsgeregeltes Regenerieren von Dieselpartikelfiltern im Einsatz am Nutzfahrzeugmotorenprüfstand; Dissertation; Technische Universität Darmstadt; 2007
- [54] Johnson, T.: Diesel Emissions in Review; SAE Technical Paper; SAE 2011-01-0304; 2011
- [55] Schmitt, A., Beidl, Ch., Lenzen, B.: Versuchsmethodik zur Entwicklung von Emissionsminderungsstrategien für Heavy-Duty Motoren; MTZ-Konferenz Heavy Duty-, On- und Off-Highway-Motoren; 17.+18. November 2009; Friedrichshafen; 2009
- [56] Lamping, M. H.J.: Zusammenhang zwischen Schadstoffreduktion und Verbrauch direkteinspritzender PKW-Dieselmotoren; Dissertation; RWTH Aachen; 2006
- [57] Iwasaki, S.: New Design Concept for Diesel Particulate Filter, SAE Technical Paper; SAE 2011-01-0603; 2011
-

-
- [58] Mizuno, Y., Miyairi, Y., Katsube, F., et al.: Study on Wall Pore Structure for Next Generation Diesel Particulate Filter; SAE Technical Paper; SAE 2008-01-0618; 2008
- [59] Furuta, Y., Mizutani, T., Miyari, Y., et al.: Study on Next Generation Diesel Particulate Filter, SAE Technical Paper; SAE 2009-01-0292; 2009
- [60] Saito, C., Nakatani, T., Miyairi, Y., et al.: New Particulate Filter Concept to Reduce Particle Number Emissions; SAE Technical Paper; SAE 2011-01-0814; 2011
- [61] Mikulic, I., Koelman, H., Majkowski, S., Vosejka, P.: A Study about Particle Filter Application on a State-of-the-Art Homogeneous Turbocharged 2l DI Gasoline Engine; 19. Aachener Kolloquium 2010; 2010
- [62] Herzberger, A.: Betriebsstrategien für einen Ottomotor mit Direkteinspritzung und NO_x-Speicher-Katalysator; Dissertation; Universität Karlsruhe; 2001
- [63] Chan, D.: Wechselwirkung zwischen Sauerstoff- und NO_x-Speicherung in Diesellabgaskatalysatoren; Bericht zum Chemisch-Technischen Vertiefungspraktikum; Universität Karlsruhe; 2009
- [64] Müller, M.: Identifikation von Zusatzfunktionen an einen Vanadium-basierten SCR-Katalysator zur Bereitstellung der für Dieselpartikelfilter erforderlichen Regenerationswärme; Dissertation; Universität Rostock; 2011
- [65] Tronconi, E.; Lietti, L.; Forzatti, P.; Mallogi, S.: Experimental and theoretical investigation of the dynamics of the SCR-DeNO_x reaction; Chemical Engineering Science; Volume 51; Issue 11; Seite 2965-2970; Juni 1996
- [66] Schär, C.M.; Onder, C.H.; Geering, H.P.; Elsener, M.: Control-Oriented Model of an SCR Catalytic Converter System; SAE 2004-01-0153; 2004
- [67] Koebel, M.; Elsener, M.; Madia, G.: Recent Advances in the Development of Urea-SCR for Automotive Applications; SAE Technical Paper; SAE 2001-01-3625; 2001
- [68] Winkler, C.; Floerchinger, P.; Patil, M.; Spurk, P.; Pfeifer, M.; Gieshoff, J.: Modeling of SCR DeNO_x Catalyst - Looking at the Impact of Substrate Attributes; SAE Technical Paper; SAE 2003-01-0845; 2003
- [69] Devadas, M.; Kröcher, O.; Elsner, M.; Wokau, A.; Mitrikas, G.; Söger, N.; Pfeifer, M.; Demel, Y.; Musmann, L.: Characterization and Catalytic Investigation of Fe-ZSM5 for Urea-SCR; Catalysis Today 2007; 119; Seite 137-144; 2007
- [70] Hausberger, S.: N₂O aus mobilen Quellen; ACCC-Workshop "N₂O und das Kyoto-Ziel"; 1999
- [71] Holderbaum, B.: Dosierstrategie für ein SCR System zur NO_x-Reduktion im Diesel-PKW; Dissertation; Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen; 2009

-
- [72] Weitkamp, J.; Puppe, L.: Catalysis and Zeolithes; Springer; Berlin, Heidelberg; 1999
- [73] Zhang, Y.; Flytzani-Stephanopoulos, M.: Hydrothermal Stability of Cerium Modified Cu-ZSM-5 Catalyst for Nitric Oxide Decomposition; Journal of Catalysis; 164; Seite 131-145; 1996
- [74] Moscou, L.: The zeolite scene - Studies in surface science and catalysis; Vol. 58; Seite 1-12; 1991
- [75] Liu, Z.; Ottinger, N.; Wall, J.; Barge, P.: Measurement of Dioxin and Furan Emissions during Transient and Multi-Mode Engine Operation; SAE Int. J. Engines 4(1):1402-1411; SAE 2011-01-1158; 2011
- [76] Laroo, C.: Dioxin, Furan, PCB and PAH Emissions from a Compression Ignition Engine Utilizing CuZ SCR, US EPA Office of Transportation and Air Quality Assessment and Standards Division; SAE 2010 World Congress; Detroit, MI; April 13, 2010
- [77] Auckenthaler, Th.; Assalve, D.: HI-eSCR concept from FPT-Industrial; 3. VDI-Fachkonferenz: Abgasnachbehandlungssysteme 2012; Stuttgart; 2012
- [78] Zimmermann, F.; Berger, U.: SCR technologies in comparison - A detailed investigation of the influence of feed gas composition on NO_x conversion comparing three series SCR technologies; 3. VDI-Fachkonferenz: Abgasnachbehandlungssysteme 2012; Stuttgart; 2012
- [79] Kang, M.; Park, E. D.; Kim, J.M.; Yie, J.E.: Cu-Mn mixed oxides for low temperature NO reduction with NH₃; Science Direct; Catalysis Today 111; Seite 236-241; 2006
- [80] Rusch, K.; Kaiser, R.; Hackenberg, S.: DPF SCR Combination Integrated Systems to Meet Future LDV Emission Limits; SAE Technical Paper; SAE 2006-01-0637; 2006
- [81] Cloudt, R.: SCR-basiertes Konzept für Euro VI bei schweren Nutzfahrzeugen; Helmond (Niederlande); MTZ 09/2009; 2009
- [82] Körfer, Th.: Kraftstoffverbrauchsvorteil des Pkw-Dieselmotors nach EURO 6; 32. Internationales Wiener Motorensymposium; Wien; 2011
- [83] Needham, D.: Delphi SCR Dosing System – An Alternative Approach for Closed-Coupled SCR Catalyst Systems; 21. Aachener Motorenkolloquium; Aachen; 2012
- [84] Reuter, W.; Terres, F.: Appropriate NO_x Aftertreatment Solutions for different Markets and Applications; 20. Aachener Motorenkolloquium; Aachen; 2011
- [85] Rose, D.: A New Generation High Porosity Dura Trap AT for Integration of DeNO_x Functionalities; 21. Aachener Motorenkolloquium; Aachen; 2012

-
- [86] Cavataio, G.; Girard, J. W.; Lambert, C. K.: Cu-Zeolite SCR on High Porosity Filters: Laboratory and Engines Performance Evaluations; SAE Technical Paper; SAE 2009-01-0897; 2009
- [87] Körfer, Th.; Kolbeck, A.; Schnorbus, Th; et al.: Kraftstoffverbrauchsvorteil des Pkw Dieselmotors nach EURO 6; 32. Wiener Motorensymposium; Wien; 2012
- [88] Alano, F.; Jean, E.; Perrot, Y.; et al.: Compact SCR for Passenger Cars; SAE Technical Paper; SAE 2011-01-1318; 2011
- [89] Johnson, T.: Vehicular Emissions in Review; SAE Technical Paper; SAE 2012-01-0368; 2012
- [90] Lee, J.; Paratore, M.; Brown, D.: Evaluation of Cu-Based SCR/DPF Technology for Diesel Exhaust Emission Control; SAE Technical Paper; SAE 2008-01-0072; 2008
- [91] Guo, G.; Warner, J.; Cavataio, G.; et al.: The Development of Advanced Urea-SCR Systems for Tier 2 Bin 5 and Beyond Diesel Vehicles; SAE Technical Paper; 2010-01-1183; 2010
- [92] Ballinger, T.; Cox, J.; Konduru, M.; et al.: Evaluation of SCR Catalyst Technology on Diesel Particulate Filters; SAE Technical Paper; SAE 2009-01-0910; 2009
- [93] Li, W. et al.: Passive Ammonia SCR - A Novel Lean NO_x Aftertreatment System; 31. Internationales Wiener Motorensymposium; Wien; 2010
- [94] Guralp, O. et al.: Experimental Study of NO_x Reduction by Passive Ammonia-SCR for Stoichiometric SIDI Engines; SAE Technical Paper; SAE 2011-01-0307; 2011
- [95] AVL Deutschland GmbH: User's Guide, Gerätebeschreibung der Abgasmessanlage; AMA i60; Stand Oktober 2008; AT 2519D Rev. 02
- [96] Dünnebeil, F.; Lambrecht, U.: Zukünftige Entwicklung der NO₂ Emissionen des Verkehrs und deren Auswirkungen auf NO₂ Luftbelastung in Städten in Baden-Württemberg; Studie des ifeu - Institut für Energie und Umweltforschung Heidelberg GmbH; im Auftrag des Umweltministeriums Baden-Württemberg; Heidelberg; 2007
- [97] Leippe, G.; Lenzen, B.; et al.: Neues System zur Messung von Stickstoffkomponenten im Einsatz an SCR-Katalysatoren; MTZ 5/2004; Jahrgang 65; 2004
- [98] ABB Automation Products GmbH, Hartmann & Braun Analytical, Advanced Optima Modulares Geräteprogramm für die Prozessgasanalyse; Systembeschreibung; 30/24-110-1 DE; 2000
- [99] Fischer, M.; Schmitt, A.: Flüssig oder Feststoff - Vergleichende Analyse verschiedener Ammoniakspeichertechnologien; VDI Fachkonferenz: Abgasnachbehandlungssysteme 2010; Stuttgart; 2010

-
- [100] Fulks, G.; Fisher, G.B.; Rahmoeller, K.; Wu, M.-C.; D'Herde, E.; Tan, J.: A Review of Solid Material as Alternative Ammonia Sources for Lean NO_x Reduction with SCR; SAE 2009-01-0907; 2009
- [101] Johannessen, T.: Compact ammonia delivery systems for automotive SCR NO_x aftertreatment; International CTI Forum on SCR Systems; Stuttgart; 2008
- [102] Gang, Lu: Catalytic Oxidation of Ammonia to Nitrogen; Dissertation; Eindhoven University of Technology; ISBN 90-386-2653-3; 2002
- [103] Kröcher, O.; Eisener, M.; Jacob, E.: Neue Reduktionsmittel für die Low NO_x-SCR-Technik; 5. Internationales Forum Abgas- und Partikelemissionen; AVL Deutschland; Ludwigsburg; 2008
- [104] Kume, T.; Iwamoto, Y.; Iida, K.; Murakami, M.; Akishino, K.; Ando, H.: Combustion Control Technologies for Direct Injection SI Engine; SAE Technical Paper Series; Nr. 690600; Warrendale; USA; 1996
- [105] Stutzenberger, H.; Preussner, C.; Gerhardt, J.: Benzin-Direkteinspritzung für Ottomotoren - Entwicklungsstand und Ausblick; 17. Internationales Wiener Motorensymposium; Wien; 1996
- [106] Schmieg, S.J.; Lee, J.-H.: Evaluation of Supplier Catalyst Formulations for the Selective Catalytic Reduction of NO_x with Ammonia; SAE Technical Paper; SAE 2005-01-3881; 2005
- [107] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Die EU-Verordnung zur Verminderung der CO₂-Emissionen von Personenkraftwagen; April 2009
- [108] Tsinoglou, D. N.; Haralampous O. A.; Koltsakis, G. C.; Samaras, Z. C.: Model-based Optimization Methods of Combined DPF+SCR Systems; SAE Technical Paper; SAE 2007-24-0098; 2007
- [109] Lecheler, S.: Numerische Strömungsberechnung; Wiesbaden; Vieweg Verlag; ISBN 978-3-8348-1568-2; 2011
- [110] Kaiser, T.: Konstruktion und Bewertung einer NH₃ Düsen-Mischgeometrie für die gasförmige Reagenzzufuhr in einem CRT-System mit SCR beschichtetem DPF am Strömungsprüfstand und am transient betriebenen Motorprüfstand; Diplomarbeit; Betreuer: Schmitt, A.; TU Darmstadt; 2013
- [111] Spurk, J. H.; Aksel, N.: Strömungslehre; Bad König; Springer Verlag; ISBN 3-540-38439-1; 2006
- [112] Schweda, M.: Modellieren und Bewerten der NH₃-Dosierung in einem CRT-System mit SCR beschichtetem DPF mittels CFD-Simulation; Diplomarbeit; Betreuer: Schmitt, A.; TU Darmstadt; 2012
- [113] Oertel, H. jr., Laurien, E.: Numerische Strömungsmechanik; Wiesbaden; Vieweg+Teubner Verlag; ISBN 3-834-81503-9; 2011
- [114] Internetquelle: <http://de.wikipedia.org/wiki/Turbulenzmodell>; 30.03.2013
-

-
- [115] Weltens, H.; Bressler, H.; Terres, F.; et al.: Optimisation of Catalytic Converter Gas Flow Distribution by CFD Prediction; SAE 930780; 1993
 - [116] Schmitt, A.: Entwicklung eines NH₃ Dosiermoduls zur Anwendung für motor-nahe SCRF Systeme und Bewertung von Einflussparameter auf SCRF Katalysatoren; Institutsbericht VKM; Technische Universität Darmstadt; unveröffentlicht; 2013
 - [117] Schmitt, A; Beidl, C.; Fischer, M.: Methodischer Ansatz zur Systemintegration zukünftiger SCR Systeme; VDI Fachkonferenz: Abgasnachbehandlungssysteme 2012; Stuttgart; 2012
 - [118] Schmitt, A.; Beidl, C.: Herausforderungen bei der Applikation von SCR Systemen; VDI Fachkonferenz: Abgasnachbehandlungssysteme 2011; Stuttgart; 2011

VI. Symbole und Abkürzungen

Lateinische Symbole

A	m^2	Austrittsfläche am Injektor
c_{NO_x}	ppm	Stickoxidkonzentration im Abgas
$c_{\text{NO}_x_nach}$	ppm	Stickoxidkonzentration hinter SCR Katalysator
$c_{\text{NO}_x_vor}$	ppm	Stickoxidkonzentration vor SCR Katalysator
$\Delta c_{\text{NO}_x_SCR}$	ppm	Differenz der Stickoxidkonzentration über SCR Katalysator
$c_{\text{NH}_3,i}$	ppm	NH_3 Konzentration am Messpunkt i
$\overline{c_{\text{NH}_3}}$	ppm	gemittelte NH_3 Konzentration
d	m	Durchmesser einer Austrittsbohrung am Injektor
ΔH	kJ/mol	Standardreaktionsenthalpie
i	-	Anzahl der Austrittsbohrungen am Injektor
l	m	Länge des Rohres
m	kg	Masse
\dot{m}	g/min	Massenstrom des Reagenz
\dot{m}_{Abgas}	kg/h	Abgasmassenstrom
\dot{m}_{NH_3}	g/min	Dosierter NH_3 Massenfluss
M_{NH_3}	g/mol	Molare Masse von NH_3
\dot{m}_{NO_x}	g/min	NO_x Emission im Abgas
M_{NO_x}	g/mol	Molare Masse von NO_x
n	min^{-1}	Motordrehzahl
p	bar	Druck
p_D	Pa	NH_3 Druck im Injektor
p_E	Pa	Abgasdruck
Δp	Pa	Druckdifferenz zwischen Anfang und Ende des Rohres
R	$\text{J}/(\text{mol K})$	Allgemeine Gaskonstante
r	m	Innenradius des Rohres
S_i	-	Anzahl der Stützstellen
T	K	Temperatur
V	m^3	Volumen
\dot{V}	m^3/s	Volumenstrom durch das Rohr
$V_{\text{kat_ist}}$	l	Ist-Volumen des Katalysators
$V_{\text{kat_soll}}$	l	Soll-Volumen des Katalysators
y	W	Energiebedarf

Griechische Symbole

α	-	Feedverhältnis
β	-	Selektivitätsverhältnis
γ	-	Gleichverteilungsindex
δ	kg/m ³	Dichte des strömenden Mediums
ε	-	Verdichtungsverhältnis
η	Pa*s	dynamische Viskosität des strömenden Mediums
η_{th}	-	thermischer Wirkungsgrad
κ	-	Isentropenexponent
μ	-	Flusskoeffizient = 0,6
π	-	Kreiszahl Pi
ρ_{Abgas}	kg/m ³	Dichte des Abgas
ρ_{NOx}	kg/m ³	Dichte der Stickoxide
ψ	-	Massenstromverhältnis von NH ₃ /Abgas

Abkürzungen

AGN	Abgasnachbehandlung
AGR	Abgasrückführung
APP	engl.: Acceleration Pedal Position
ATL	Abgasturbolader
CAN	engl.: Controller Area Network
CC	engl.: closed coupled
cDPF	katalytisch beschichteter Dieselpartikelfilter
CFD	engl.: Computational Fluid Dynamics
CLD	Chemilumineszenz
CRT	engl.: Continuously Regenerating Trap
DI	engl.: Direct Injection
DIN	Deutsches Institut für Normung
DNS	Direkte Numerische Simulation
DOC	engl.: Diesel Oxidation Catalyst
DPF	Dieselpartikelfilter
ECE	engl.: Economic Commission for Europe
ECU	engl.: Engine Control Unit
EG	Europäische Gemeinschaft
EMF	engl.: Electromotive Force

EU	Europäische Union
EUDC	engl.: Extra Urban Driving Cycle
FS	engl.: Full Scale
FTP	engl.: Federal Test Procedure
GPF	engl.: Gasoline Particle Filter
GSi	generisch serielle Schnittstelle
HCCI	engl.: Homogeneous Charge Compression Ignition
HD	Hochdruck
HD	engl.: Heavy Duty
IRD	Infrarot-Detektor
JMW	Jahresmittelwert
LES	engl.: Large Eddy Simulation
LKW	Lastkraftwagen
MFC	engl.: Mass Flow Controller
ND	Niederdruck
NEDC	engl.: New European Driving Cycle
NSK	NO _x Speicherkatalysator
OBD	On-Board-Diagnosesystem
OEM	engl.: Original Equipment Manufacturer
OSC	engl.: Oxygen Storage Capacity
PAK	Polyzyklische Aromatische Kohlenwasserstoffe
PGM	engl.: Platinum Group Metals
PIV	engl.: Particle Image Velocimetry
PKW	Personenkraftwagen
RANS	engl.: Reynolds-Average-Navier-Stokes
RT	engl.: Real Time
SCR	engl.: Selective Catalytic Reduction
TU	Technische Universität
TWC	engl.: Three Way Catalyst
UDC	engl.: Urban Driving Cycle
UF	engl.: under floor
UI	engl.: Uniformity Index
US06	engl.: United States 06
VKM	Institut für Verbrennungskraftmaschinen und Fahrzeugantriebe

VII. Anhang

Berechnungsansatz⁵ zur Bestimmung der NO_x Emission

$$m_{NOx} = \sum_{i=1}^{i=n} \frac{\rho_{NOx}}{\rho_{Abgas}} * c_{NOx} * \dot{m}_{Abgas} * k_{Feuchte} * \frac{1}{f} \quad (i)$$

mit

m_{NOx}	NO _x Emission [g]
ρ_{NOx}	Dichte NO _x [kg/m ³]
ρ_{Abgas}	Abgasdichte [kg/m ³]
c_{NOx}	NO _x Konzentration [ppm]
\dot{m}_{Abgas}	Abgasmassenstrom [kg/h]
$k_{Feuchte}$	Korrekturfaktor zur Berücksichtigung der Umgebungsbedingungen [-]
f	Abtastrate der Datenaufzeichnung [Hz]
n	Anzahl der Messungen

Das sich im transienten motorbetrieb ändernde NO₂/NO Verhältnis wird in der NO_x Emissionsberechnung der ISO 16183 nicht berücksichtigt. Stattdessen wird ein konstanter Wert gesetzt ($\rho_{NOx} = 2,053 \text{ kg/m}^3$). Dies entspricht einem NO₂/NO Verhältnis von 30:70.

In der Tabelle i sind Abgasdichten für verschiedene Kraftstoffarten aufgeführt. Hierbei handelt sich um eine Zusammenstellung entsprechend der gängigen Kraftstoffqualität. Ist eine exakte Bestimmung notwendig, so bedarf es der Kenntnis der allgemeinen Kraftstoffzusammensetzung bezüglich der Bestandteile C, H₂, O₂, N₂ und S.

Tabelle i: Abgasdichten und Dichtefaktoren verschiedener Kraftstoffarten

Kraftstoff	Abgasdichte [kg/m ³]	Dichtefaktor (ρ_{NOx}/ρ_{Abgas}) ⁶
Otto	1,2977	0,001582
Diesel	1,2939	0,001587
RME	1,2950	0,001585
Methanol	1,2607	0,001628
Ethanol	1,2756	0,001609
Erdgas	1,2656	0,001622
Propan	1,2805	0,001603
Butan	1,2977	0,001600

NO_x Korrektur für Temperatur und Feuchte

Die Bildung von NO_x Emissionen steht in direkter Abhängigkeit zu den herrschenden Umgebungsbedingungen der Lufttemperatur und der Luftfeuchte. Um die Vergleichbarkeit der Messergebnisse unabhängig der Umgebungsbedingungen zu gewährleisten, ist ein Korrekturfaktor in Abhängigkeit des Verbrennungskonzeptes zu bestimmen.

⁵ Nach ISO 16183

⁶ Gültig bei $\lambda=2$, trockene Luft, 273 K, 1013 mbar

a) Selbstzünder:

$$k_{Feuchte_Diesel} = \frac{1}{1 - 0,0182 * (H_{Luft} - 10,71) + 0,0045 * (T_{Luft} - 298)} \quad (ii)$$

mit

H_{Luft} absolute Feuchte der Ansaugluft [$g_{H_2O} / kg_{tr. Luft}$]
 T_{Luft} Temperatur der Ansaugluft [K]

b) Fremdzünder:

$$k_{Feuchte_Otto} = 0,6272 + 44,030 * 10^{-3} * H_{Luft} - 0,862 * 10^{-3} * H_{Luft}^2 \quad (iii)$$

Lebenslauf

Andreas Schmitt

Geboren am 19. März 1977 in Rüsselsheim

Wissenschaftlicher Werdegang

06/2013	Promotion an der Technischen Universität Darmstadt Abschluss: Doktor-Ingenieur (Dr.-Ing.)
04/2011 - 04/2012	Studium: Mechanical and Process Engineering, TU Darmstadt Abschluss: Master of Science (M.Sc.)
10/2000 - 03/2008	Studium: Maschinenbau, TU Darmstadt Abschluss: Diplom-Ingenieur (Dipl.-Ing.)
10/2000 - 02/2007	Studium: Mechanical and Process Engineering, TU Darmstadt Abschluss: Bachelor of Science (B.Sc.)
09/1996 - 01/1999	Berufsausbildung: Automobilmechaniker Abschluss an der IHK Rheinhessen: Facharbeiter
08/1989 - 06/1996	Immanuel-Kant-Schule, Rüsselsheim Abschluss: Allgemeine Hochschulreife